



Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : application à la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.)

Guillaume Baudry

► To cite this version:

Guillaume Baudry. Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : application à la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.). Physique [physics]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 2003. Français. NNT: . tel-00390689

HAL Id: tel-00390689

<https://theses.hal.science/tel-00390689>

Submitted on 2 Jun 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



N° d'ordre : 4415

Thèse présentée pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Louis Pasteur
Strasbourg I

Discipline : Physique
par Guillaume BAUDRY

Correction des effets de matrice par spectrométrie
des rayonnements gamma de capture :
application à la mesure par Interrogation
Neutronique Active (I.N.A.)

Soutenue publiquement le 26 novembre 2003

Membres du jury

Président du jury et Rapporteur interne :	M. A. NOURREDDINE, PR-ULP, Strasbourg
Rapporteur externe :	M. B. BERTHIER, DR-CNRS, Orsay
Rapporteur externe :	M. R. BRISSOT, PR-INPG/ENSPG, Grenoble
Directeur de thèse :	M. J-C. SENS, PR-ULP, Strasbourg
Invitée :	Mlle. F. JALLU, Ingénieur Docteur CEA

RESUME

Dans le domaine de la mesure de faibles masses de matière fissile (^{235}U , ^{239}Pu , $^{241}\text{Pu}\dots$) dans des colis de déchets radioactifs, l'Interrogation Neutronique Active (I.N.A.) est une méthode de mesure non-destructive permettant d'atteindre de bonnes performances. Elle reste cependant pénalisée par des incertitudes liées notamment aux effets de la matrice du colis de déchets.

L'objectif de cette thèse est le développement d'une méthode de correction de ces effets de matrice, reposant sur la détermination de la teneur en matériaux absorbants (chlore et hydrogène) dans une matrice homogène de 118 litres. L'idée exploitée est d'utiliser la spectrométrie des rayonnements gamma de capture neutronique pour identifier et quantifier les composants de la matrice et en déduire un indicateur de sa teneur relative en chlore, afin de choisir le coefficient d'étalonnage le plus représentatif pour l'interprétation de la mesure neutronique I.N.A.

Ce document expose tout d'abord les besoins de contrôle et de caractérisation des objets radioactifs ainsi que les moyens employés dans le cadre de la mesure nucléaire. Un accent particulier est mis sur l'I.N.A. Les colis de déchets concernées dans cette thèse sont des déchets technologiques, de densité inférieure à $0,4 \text{ g/cm}^3$ et constituées majoritairement de matériaux hydrogénés et chlorés. L'intérêt des rayonnements gamma de capture pour la détermination d'un indicateur de la teneur relative en chlore des matrices et la méthode de correction définie sont ensuite exposés. Des premiers essais expérimentaux réalisés auprès d'une cellule de mesure I.N.A. existante (PROMETHEE 6) ont révélé son inadéquation au problème posé. En effet, aucun signal hydrogène provenant des matrices n'a pu être mis en évidence compte tenu d'un même signal parasite intense. En outre, le niveau de signal chlore mesuré s'est avéré faible. Une cellule de mesure dédiée à la détection des rayonnements gamma de capture, baptisée REGAIN (REcherche des Gamma d'Activation et Irradiation Neutronique), a alors été dimensionnée à l'aide du code de calcul Monte-Carlo N-Particle (MCNP). Les mesures effectuées auprès de cette nouvelle cellule ont permis de mettre en évidence l'hydrogène des matrices et d'obtenir des signaux gamma d'intérêt utilisables. L'exploitation de ces résultats a ensuite conduit à la définition d'une méthode de correction reposant sur le tracé d'abaques reliant l'indicateur retenu - rapport du signal chlore (doublet à 786/88 keV) et du signal hydrogène (raie à 2223,3 keV) - à la teneur relative en PolyChlorure de Vinyle (PVC) de la matrice, puis au coefficient d'étalonnage I.N.A. calculé par le code de calcul MCNP.

Cette méthode de correction réduit l'incertitude sur la masse de contaminant annoncée par rapport à l'interprétation pénalisante réalisée sans aucune connaissance de la composition de la matrice, et ce sur la majeure partie du domaine de compositions et de densités étudié. Les limites actuelles de la méthode proposée se situent principalement dans la dispersion de l'indicateur choisi en fonction de la densité pour une composition de matrice donnée.

Mots-clefs : Interrogation Neutronique Active (I.N.A.), Spectrométrie gamma, Rayonnements gamma de capture, Effets de matrice, Méthode de correction.

ABSTRACT

In the field of the measurement of low masses of fissile material (^{235}U , ^{239}Pu , $^{241}\text{Pu}\dots$) in radioactive waste drums, the Active Neutron Interrogation is a non-destructive method achieving good results. It does however remain reliant upon uncertainties related to the matrix effects on interrogation and fission neutrons.

The aim of this thesis is to develop a correction method able to take into account these matrix effects by quantifying the amount of absorbant materials (chlorine and hydrogen) in a 118-liter homogeneous matrix. The main idea is to use the gamma-ray spectrometry of gamma emitted by neutron captures to identify and quantify the composition of the matrix. An indicator from its chlorine content is then deduced in order to choose the calibration coefficient which best represents the real composition of the matrix.

This document firstly presents the needs of control and characterization of radioactive objects, and the means used in the field of nuclear measurement. Emphases is put in particular on the Active Neutron Interrogation method. The matrices of interest are those made of light technological waste (density $< 0,4 \text{ g/cm}^3$) containing hydrogenated and chlorinated materials. The advantages of gamma-rays emitted by neutron captures for the determination of a chlorine content indicator of the matrices and the principles of the correction method are then explained. Measurements have been firstly realized with an existing Neutron Interrogation device (PROMETHEE 6). Such measurements have proven its inadequacy : no signal from the matrix hydrogen was detected, due to an intense signal from the polyethylene contained in some cell elements. Moreover, the matrix chlorine content appeared difficult to be measured. A new and specific device, named REGAIN and dedicated to active gamma-rays spectrometry, was defined with the Monte-Carlo N-Particle (MCNP) code. The experiments conducted with this new device made it possible to detect the hydrogen from the matrices and to reach significative gamma-ray signals that can be used to develop the suggested correction method. The latter is based on graphs showing the variation of the indicator – the ratio of the chlorine signal (786/788 keV) to the hydrogen signal (2223 keV) - with the matrix PolyVinyle Chlorure (PVC) content, and then with the calibration factor calculated by the MCNP code.

This correction method leads to the reduction of the uncertainties of the announced mass of fissile material compared with those deduced from the penalizing interpretation resulting from the lack of knowledge of the matrix composition. This improvement is obtained on the major part of the studied range of matrix compositions and densities. Its current limits are mainly to be found in the dispersion of the chosen indicator according to the density for a given matrix composition.

Key words : Active Neutron Interrogation, Gamma-ray spectrometry, Neutron capture gamma-rays, Matrix effect, Correction method.

REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse a été effectué au Laboratoire de Développement des Mesures Nucléaires (LDMN) du Centre d'Etudes Nucléaire de Cadarache.

J'adresse mes remerciements à :

Monsieur J-C. SENS, pour avoir assuré la direction de cette thèse,

Monsieur A. NOURREDDINE, pour avoir accepté la présidence du jury,

Messieurs R. BRISSOT et B. BERTHIER, pour leur présence dans le jury en tant que rapporteurs,

Monsieur H. MASSON, pour avoir accepté la participation de COGEMA au financement de mes travaux,

Mademoiselle F. JALLU, pour avoir tenu le rôle de responsable CEA pour cette thèse.

Ma reconnaissance va tout particulièrement à Monsieur J-L MA, pour avoir partagé ses connaissances sur le sujet et mis à ma disposition des moyens de mesure mis au point par ses soins. Je le remercie tout particulièrement d'avoir pris le temps de relire ma prose pendant son temps libre : ce mémoire lui doit beaucoup.

Je remercie également toutes les personnes qui, à des degrés divers, m'ont permis d'avancer dans ce travail et qui ont toujours pris le temps de répondre à mes interrogations : Messieurs C. PASSARD, B. PEROT et A. MARIANI.

Les expérimentations n'auraient pu être menées à bien sans l'aide compétente de techniciens du laboratoire : merci à J. LORIDON, E. PAYAN et S. BERNARD pour les coups de main ponctuels ou plus durables.

Enfin, je remercie toutes les personnes que j'ai pu rencontrer au CEA, du LDMN et d'ailleurs, dont de nombreux stagiaires et thésards, pendant les trois années que j'ai passées à leur côtés, pour la bonne ambiance qu'ils ont contribué à maintenir dans le cadre professionnel et en dehors.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	2
CHAPITRE 1 : CARACTERISATION D'OBJETS RADIOACTIFS : LA MESURE NUCLEAIRE	
1 LE BESOIN : CONTRÔLE ET CARACTÉRISATION D'OBJETS RADIOACTIFS	5
2 LE MOYEN : LA MESURE NUCLÉAIRE	6
2.1 LES MÉTHODES DE MESURES DESTRUCTIVES	6
2.2 LES MÉTHODES DE MESURES NON DESTRUCTIVES	6
2.2.1 <i>Les mesures passives</i>	6
2.2.1.1 La spectrométrie gamma	7
2.2.1.2 Le comptage neutronique passif	7
2.2.1.3 Quelques autres méthodes passives	8
2.2.1.3.1 Calorimétrie	8
2.2.1.3.2 Tomographie d'émission	8
2.2.2 <i>Les mesures actives</i>	9
2.2.2.1 Utilisation d'une source photonique	9
2.2.2.1.1 Densitométrie par transmission	9
2.2.2.1.2 Gamma-fluorescence X	9
2.2.2.1.3 Interrogation Photonique Active (I.P.A.)	10
2.2.2.1.4 Imagerie par transmission gamma	10
2.2.2.2 Utilisation d'une source de neutrons	11
2.2.2.2.1 L'Interrogation Neutronique Active	11
2.2.2.2.2 La spectrométrie gamma active	12
2.2.3 <i>Avantages et inconvénients des différents types de mesure</i>	13
3 SOURCES DE LIMITATIONS LIÉES À L'I.N.A.	14
3.1 LES INCERTITUDES DE MESURE	14
3.1.1 <i>Influence du contaminant</i>	14
3.1.2 <i>Influence de la nature de la matrice</i>	15
3.2 LE CAS PÉNALISANT DES EFFETS DE MATRICE	15
3.2.1 <i>Nature et position du problème</i>	15
3.2.2 <i>Etat de l'art des méthodes de correction</i>	16
3.2.2.1 Correction à l'aide de moniteurs	16
3.2.2.2 Application dans la cellule d'I.N.A. PROMETHEE 5	18
3.2.2.3 Conclusion sur le principe général de correction	19
4 ILLUSTRATIONS DES PERFORMANCES ET LIMITATIONS DE L'I.N.A : LA CELLULE PROMETHEE 6	20
4.1 DESCRIPTION DE LA CELLULE	20

4.2	ILLUSTRATION DE LA LIMITATION IMPOSÉE PAR LES EFFETS DE MATRICE DANS PROMETHEE 6	22
4.3	ILLUSTRATION DES LIMITATIONS IMPOSÉES PAR D'AUTRES EFFETS	25
4.3.1	<i>Incertitudes de position</i>	25
4.3.2	<i>Incertitudes dues à la confusion U/Pu</i>	26
5	CONCLUSION	26

CHAPITRE 2 : CORRECTION DES EFFETS DE MATRICE PAR SPECTROMETRIE DES RAYONNEMENTS GAMMA DE CAPTURE : PRINCIPE ET METHODE

1	CARACTÉRISATION D'ÉLÉMENTS SIMPLES PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA SOUS IRRADIATION NEUTRONIQUE	29
1.1	LES RÉACTIONS NEUTRONIQUES SOURCES DE RAYONNEMENTS GAMMA	29
1.1.1	<i>Les réactions de diffusion neutronique ($n, n'\gamma$)</i>	30
1.1.2	<i>Les réactions d'activation/désactivation</i>	30
1.1.3	<i>La réaction de fission</i>	31
1.1.4	<i>La réaction de capture radiative</i>	31
1.2	POTENTIALITÉS DES RAYONNEMENTS GAMMA DE CAPTURE DANS LE CADRE DE LA CORRECTION DES EFFETS DE MATRICE	36
1.2.1	<i>Les travaux de Close et al.</i>	36
1.2.2	<i>Etude du bruit de fond actif dans PROMETHEE 5</i>	37
1.2.3	<i>Premiers essais de détection des gamma de capture dans PROMETHEE 5</i>	37
1.2.4	<i>Conclusion sur la validité de principe</i>	40
2	MÉTHODE EXPÉRIMENTALE DE SPECTROMÉTRIE DES RAYONNEMENTS GAMMA DE CAPTURE	41
2.1	UTILISATION D'UN GÉNÉRATEUR DE NEUTRONS EN MODE CONTINU	41
2.1.1	<i>Gestion des forts taux de comptage</i>	42
2.1.2	<i>Détérioration du détecteur gamma</i>	42
2.2	DISCRIMINATION DES RAYONNEMENTS ISSUS DES DIFFÉRENTS TYPES DE RÉACTION	43
2.3	MÉTHODE UTILISANT UNE PORTE TEMPORELLE D'ACQUISITION	44
2.3.1	<i>Principe de la méthode</i>	44
2.3.2	<i>Mise en oeuvre</i>	44
2	MÉTHODE DE CORRECTION DES EFFETS DE MATRICE ENVISAGÉE	47
3.1	PRINCIPE	47
3.2	MÉTHODE DE CORRECTION	48
4	CONCLUSION	49

CHAPITRE 3 : MISE EN EVIDENCE DE L'INADEQUATION DE PROMETHEE 6 ET DEVELOPPEMENT D'UNE NOUVELLE CELLULE DEDIEE

1	CHOIX DE L'EMPLACEMENT DU DÉTECTEUR GAMMA PAR CALCUL MCNP	52
1.1	LE CODE DE CALCUL MCNP	52
1.1.1	<i>La méthode Monte Carlo</i>	52
1.1.2	<i>Application au transport d'une particule : le code MCNP</i>	52
1.2	ESTIMATION DES FLUENCES DE NEUTRONS DEVANT LA CELLULE PROMETHEE 6	54
1.3	ESTIMATION DE LA FLUENCE GAMMA AUTOUR DE LA CELLULE PROMETHEE 6	55
2	ETUDE EXPÉRIMENTALE	56
2.1	ETUDE DE LA VARIATION DU TAUX DE COMPTAGE EN FONCTION DU TEMPS	58
2.2	PREMIÈRES MESURES AVEC LES PARAMÈTRES NOMINAUX DU GÉNÉRATEUR DE NEUTRONS	59
2.2.1	<i>Intérêt d'une porte d'acquisition</i>	59
2.2.2	<i>Résultats de mesure avec les paramètres nominaux</i>	62
2.2.2.1	Dépouillement des spectres de bruit de fond actif	63
2.2.2.2	Résultats des mesures sur différentes matrices	65
2.3	MODIFICATION DES PARAMÈTRES DE MESURE I.N.A.	67
2.3.1	<i>Etude de l'influence de la période de répétition du tir</i>	67
2.3.2	<i>Résultats obtenus avec les nouveaux paramètres</i>	69
2.4	CONCLUSION DES EXPÉRIMENTATIONS AUPRÈS DE PROMETHEE 6	71
3	DÉVELOPPEMENT D'UNE CELLULE DE MESURE ADAPTÉE : APPORT DE LA MODÉLISATION	72
3.1	UTILISATION DU CODE DE CALCUL MCNP DANS LE CADRE DU DIMENSIONNEMENT DE REGAIN	74
3.2	PARAMÈTRES DE LA MODÉLISATION MCNP	75
3.3	SYNTHÈSE DES CALCULS RÉALISÉS	76
3.4	CONCLUSION SUR LE DIMENSIONNEMENT	77
4	CONCLUSION	79

CHAPITRE 4 : ETUDE DE FAISABILITE DE LA METHODE DE CORRECTION ET RESULTATS

1	CONDITIONS DE MESURE	82
1.1	UTILISATION DE TROIS CODEURS EN PARALLÈLE	82
1.2	PROTECTION DE LA DIODE GERMANIUM AVEC UN CAPOT B4C	83
2	ETUDE EXPÉRIMENTALE AUPRÈS DE REGAIN	85

2.1	DIFFICULTÉS LIÉES À L'UTILISATION D'UNE PORTE TEMPORELLE D'ACQUISITION DANS REGAIN	85
2.1.1	<i>Temps mort élevé : utilisation d'une source de ^{60}Co comme moniteur</i>	85
2.1.2	<i>Etude de la variation du temps mort pendant une période de tir du générateur de neutrons</i>	87
2.2	RECHERCHE DES PARAMÈTRES TEMPORELS OPTIMUMS POUR LA MESURE AVEC PORTE TEMPORELLE D'ACQUISITION	88
2.3	MESURES EN IRRADIATION CONTINUE	89
2.3.1	<i>Evaluation du temps mort en irradiation continue</i>	90
2.3.2	<i>Comparaison des performances de PROMETHEE 6 et REGAIN</i>	91
2.3.3	<i>Recherche du meilleur emplacement pour le détecteur gamma</i>	92
2.3.3.1	Diode placée en face avant de REGAIN	93
2.3.3.2	Diode placée à travers la porte de la cellule REGAIN	94
2.3.4	<i>Illustration du comportement expérimental observé à l'aide de MCNP</i>	97
2.3.4.1	Illustration des effets de matrice : inhomogénéité de la répartition du nombre de captures engendré dans la matrice	98
2.3.4.2	Illustration de la faible variation du rendement de détection en fonction de la densité de la matrice	100
2.3.4.3	Combinaison des effets de matrice et du rendement de détection : estimation de la variation d'un paramètre relié au signal expérimental mesuré	101
2.4	CONCLUSION DE L'ÉTUDE EXPÉRIMENTALE SUR REGAIN	103
3	DÉFINITION D'UNE MÉTHODE DE CORRECTION DES EFFETS DE MATRICE	104
3.1	UTILISATION D'UN RAPPORT DE SIGNAUX COMME PARAMÈTRE DE LA CORRECTION	104
3.1.1	<i>Calcul des Limites de Détection</i>	104
3.1.2	<i>Construction d'abaques expérimentaux</i>	105
3.1.3	<i>Construction d'abaques calculés</i>	107
3.1.4	<i>Influence de la densité de la matrice</i>	109
3.2	EVALUATION DU COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE CORRIGÉ	109
4	EVALUATION DES PERFORMANCES DE LA MÉTHODE DE CORRECTION PROPOSÉE	112
4.1	PROPAGATION D'ERREURS	113
4.1.1	<i>Incertitude statistique</i>	113
4.1.1.1	Incertitude de mesure sur le quotient SCI/SH	113
4.1.1.2	Propagation de l'incertitude statistique à la détermination de la teneur en PVC	114
4.1.1.3	Propagation de l'incertitude statistique à la détermination du coefficient d'étalonnage Ket	115
4.1.2	<i>Prise en compte d'autres sources d'incertitudes</i>	116
4.1.2.1	Incertitude liée à la dispersion du rapport SC I/ SH avec la densité	116
4.1.2.2	Incertitude résultant de la dispersion sur le coefficient d'étalonnage corrigé	117
4.1.3	<i>Apports de la méthode de correction proposée</i>	120
4.1.3.1	Définition du gain de la méthode de correction	120
4.1.3.2	Evaluation du gain apporté par la méthode	121
4.1.3.2.1	Cas des matrices constituées uniquement de cellulose	121

4.1.3.2.2	Cas des matrices composées d'un mélange de cellulose et de PVC	122
5	CONCLUSION	128
	CONCLUSION ET PERSPECTIVES	132
	REFERENCES	136
	ANNEXE 1 : DIMENSIONNEMENT DE REGAIN	142
	ANNEXE 2 : CALCUL DES LIMITES DE DETECTION	159

Introduction générale

Le besoin de contrôle et de caractérisation d'objets radioactifs est important dans de nombreux domaines, souvent liés à l'industrie nucléaire (production d'électricité, médecine, environnement, recherche...). La mesure nucléaire propose des moyens efficaces pour répondre à ce besoin, par des techniques destructives ou non-destructives. Dans le cas particulier de la gestion des déchets nucléaires, les méthodes de mesure mises en œuvre sont souvent non-destructives, dans le but de conserver intact le confinement des déchets dans leur conteneur. Ces méthodes peuvent être passives, lorsque l'émission spontanée des radioéléments peut être détectée, ou actives, quand des réactions sur le contaminant sont induites par une source externe de particules.

Dans la palette des méthodes actives non-destructives existantes, l'Interrogation Neutronique Active (I.N.A.) est utilisée notamment pour la caractérisation et le contrôle des colis de déchets radioactifs dans le but de quantifier des traces de matière fissile. Cette méthode permet de mesurer de très faibles activités alpha, typiquement de l'ordre de 100 Bq par gramme de déchet brut. Ses performances sont cependant grandement liées à l'interprétation du signal neutronique utile mesuré. Le coefficient d'étalonnage reliant de façon proportionnelle ce signal à la masse de matière fissile dépend en effet de la composition de la matrice (matière non-radioactive contenue dans le colis). Les propriétés modératrices et absorbantes des éléments entrant dans la composition de cette dernière ont une influence notamment sur les flux de neutrons interrogateurs et par conséquent sur le nombre de fissions engendrées. Quand la nature de la matrice est mal connue, le signal neutronique est interprété en se plaçant dans le cas le plus défavorable, c'est-à-dire dans l'hypothèse d'une matrice fortement absorbante. Par exemple, la surestimation de la masse de matière fissile qui en découle atteint un facteur 5 entre une matrice composée de cellulose de densité¹ 0,14 g/cm³ et une matrice de PolyChlorure de Vinyle (PVC) de densité 0,25 g/cm³. Il est donc préférable de corriger les effets de la matrice.

Les méthodes de correction présentées à ce jour dans la littérature reposent sur l'emploi de détecteurs de neutrons. Ceux-ci sont utilisés comme des moniteurs permettant de quantifier l'impact global de la matrice en termes d'absorption et de modération vis-à-vis des flux de neutrons. Les méthodes de correction sont alors basées sur des formulations diverses utilisant les signaux neutroniques mesurés par ces moniteurs. Ce type d'approche ne permet cependant pas d'identifier et de quantifier les éléments responsables des effets de matrice observés, ni de reconnaître le type de matrice mis en jeu (cf. chapitre 1).

L'objet de cette thèse consiste à développer une méthode de correction des effets de matrice appliquée à la mesure par I.N.A., basée sur l'analyse élémentaire déduite de la spectrométrie des rayonnements gamma de capture. Dans un premier temps, compte tenu de la complexité des phénomènes mis en jeu, l'étude est limitée au cas des matrices homogènes. En outre, les éléments d'intérêt sont restreints à l'hydrogène et au chlore, qui possèdent des sections efficaces de capture radiative élevées et entrent majoritairement dans la composition des matrices des colis de déchets technologiques. L'objectif est de quantifier leur teneur relative en chlore et en hydrogène afin de mieux interpréter le signal neutronique utile obtenu par I.N.A. et ainsi déclarer une masse plus réaliste de contaminant fissile.

La mise en œuvre de la spectrométrie des rayonnements gamma de capture dans cette problématique apparaît intéressante pour plusieurs raisons. Dans un dispositif d'I.N.A. fonctionnant avec une source de neutrons pulsée basée sur la réaction deutérium-tritium $D(n,\alpha)T$, les neutrons énergétiques émis (14 MeV) sont volontairement thermalisés dans le

¹ Le terme de densité est employé abusivement pour désigner la masse volumique. La densité est exprimée en g/cm³ dans l'ensemble de ce mémoire.

but de favoriser la réaction de fission avec le contaminant. Or, c'est également pour les neutrons de faible énergie que la section efficace de capture radiative est prépondérante. Les rayonnements gamma émis consécutivement à une capture neutronique signalent la présence de l'isotope l'ayant subie. Parmi ces photons, beaucoup possèdent une énergie élevée (quelques MeV) qui favorise leur transport à travers la matrice et la cellule de mesure jusqu'à un détecteur. Cette réaction semble donc particulièrement adaptée pour obtenir des indications sur la composition élémentaire des matrices. Toutefois, l'inconvénient majeur de cette approche réside dans la difficulté d'extraire la seule composante de capture radiative utile (chlore et hydrogène) parmi l'ensemble des réactions neutroniques se produisant avec tous les éléments présents, suite à un bombardement de neutrons d'énergie allant jusqu'à 14 MeV (diffusions inélastiques des neutrons rapides, captures radiatives des neutrons thermiques sur d'autres matériaux que ceux d'intérêt, réactions d'activation de type $(n, 2n)$, (n, p) ...). L'intérêt et les inconvénients de l'utilisation de la spectrométrie des rayonnements gamma de capture dans l'application visée sont discutés dans le chapitre 2.

Dans un premier temps, les expérimentations ont été réalisées auprès d'une cellule de mesure optimisée pour l'I.N.A. (baptisée PROMETHEE 6), afin d'étudier la possibilité de réaliser l'acquisition des signaux gamma d'intérêt simultanément aux mesures neutroniques. Le flux de neutrons interrogateurs étant *a priori* source de très nombreux rayonnements gamma, il est nécessaire de mettre en oeuvre une chaîne de spectrométrie gamma adaptée au traitement des forts taux de comptage. Les potentialités d'une méthode de mesure utilisant une porte temporelle d'acquisition permettant de sélectionner les réactions d'intérêt en vue de réduire le bruit de fond gamma actifs ont également été étudiées.

Dans un second temps, l'hydrogène du polyéthylène de la cellule de mesure I.N.A. produisant exactement la même signature par capture radiative que les composés hydrogénés de la matrice, un intense signal parasite rend inexploitable le signal hydrogène mesuré, une nouvelle cellule de mesure baptisée REGAIN (REcherche des Gamma d'Activation et d'Irradiation Neutronique) a été dimensionnée. Elle est dédiée à la spectrométrie gamma active et notamment à la détection des rayonnements gamma de capture induits dans des colis de 118 litres par une irradiation neutronique. La conception de REGAIN est effectuée au moyen du code de calcul Monte Carlo N-Particle (MCNP), fonctionnant sur le principe de la méthode probabiliste Monte Carlo, avec pour objectif l'obtention d'un signal utile provenant de l'hydrogène des matrices et la maximisation du signal provenant du chlore. Les premières études expérimentales réalisées auprès de la cellule PROMETHEE 6 ainsi que le dimensionnement de la cellule REGAIN font l'objet du chapitre 3 de ce mémoire.

La mise en oeuvre de la spectrométrie gamma auprès de cette nouvelle cellule dédiée doit permettre d'obtenir expérimentalement des signaux utilisables pour l'élaboration d'une méthode de correction des effets de matrice. La méthode envisagée repose en effet sur l'identification de la matrice (cellulose, PVC ou mélange de ces deux matériaux) et sur la quantification de sa teneur relative en PVC. Le coefficient d'étalonnage I.N.A. est ainsi corrigé sur la base d'abaques établis par mesures et calculs. L'analyse et le traitement des signaux gamma provenant des réactions de capture sur l'hydrogène et le chlore conduit en effet à la définition d'un indicateur de la teneur relative de la matrice en ces éléments. Les études expérimentales réalisées auprès de la cellule REGAIN ainsi que l'application de la méthode de correction élaborée à partir des signaux obtenus expérimentalement sont présentées dans le chapitre 4. Les performances de la méthode de correction proposée sont alors évaluées. Enfin, les perspectives en vue d'appliquer la spectrométrie des rayonnements gamma de capture pour améliorer encore la prise en compte des effets de matrice en I.N.A. sont exposées.

Chapitre 1

Caractérisation d'objets radioactifs : la mesure nucléaire

L'objet de cette thèse est l'étude d'une technique de mesure dédiée à la correction des effets de matrice rencontrés lors de la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.). Le but de ce chapitre est de présenter le contexte de la mesure par I.N.A. et de mettre en évidence les incertitudes liées aux effets de matrice. Pour cela, les différentes techniques et méthodes de mesure applicables au contrôle et à la caractérisation d'objets radioactifs sont d'abord présentées. La distinction entre méthodes destructives et non-destructives est exposée, ainsi que celle entre mesures actives et passives. L'accent est ensuite mis sur les limitations liées à la mesure par I.N.A., en particulier sur les incertitudes liées aux effets de matrice. Enfin, les performances actuelles de l'I.N.A. sont illustrées en prenant l'exemple de la cellule de mesure neutronique PROMETHEE 6.

1 Le besoin : contrôle et caractérisation d'objets radioactifs

Le besoin de contrôle et de caractérisation d'objets radioactifs est important dans tous les domaines de l'industrie nucléaire.

Une grande partie des besoins réside dans les opérations de contrôle des procédés. Les opérations liées au cycle du combustible nucléaire (enrichissement, fabrication des différents types de combustible...) nécessitent en effet d'assurer d'une part la sécurité des installations et des personnels (notamment face aux risques de criticité) et de contrôler d'autre part qu'il n'y a pas détournement de matière fissile. Cela implique de mesurer et de contrôler en ligne la production afin de connaître la quantité de matière fissile présente ainsi que son isotopie. Dans un domaine connexe, les opérations de retraitement du combustible nécessitent également des moyens de contrôle et de caractérisation adaptés aux radionucléides manipulés : uranium, plutonium et produits de fission.

Une autre partie des besoins réside dans le domaine de la gestion des déchets nucléaires. La loi du 30 décembre 1991 (dite loi Bataille) a fixé le cadre législatif relatif à la gestion des déchets nucléaires en France et a rendu indépendant l'organisme français chargé de la gestion des déchets nucléaires (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RadioActifs). La gestion des différents types de déchets nécessite de disposer des moyens de mesure adaptés pour caractériser et quantifier la matière radioactive présente dans les colis, afin notamment de les orienter vers les filières de traitement adaptées. Dans une thématique proche, les opérations de démantèlement des installations nucléaires réclament elles aussi des moyens de mesure et de contrôle et génèrent également un volume important de déchets.

Dans un autre domaine, les contraintes environnementales imposent de pouvoir contrôler la quantité de radioéléments émis par les industries nucléaires (effluents gazeux ou liquides). Les mesures environnementales concernent également la surveillance du risque lié à la concentration en radon, d'origine naturelle, ainsi que celle des niveaux de contamination, d'origines variées : essais nucléaires atmosphériques, catastrophe nucléaire de Tchernobyl (^{137}Cs par ex.). Le besoin est ici axé sur la détection de traces de contamination et nécessite des équipements particuliers, comme les enceintes à bas niveau de bruit de fond. Les moyens mis en œuvre dans ce type de mesures peuvent également être employés dans le domaine de la climatologie, l'archéologie ou la géologie, par exemple pour des mesures de datation.

Les autorités de sûreté nationales (Direction Générale de la Sûreté Nucléaire et de la Radioprotection, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire) et internationales (Agence Internationale pour l'Energie Atomique notamment) sont également intéressées par l'obtention de mesures fiables et précises permettant de garantir la conformité des installations, des procédures et des opérations avec les dispositions prévues par la législation. Un des enjeux majeurs actuels est le contrôle des matières nucléaires, particulièrement d'origine militaire, afin d'en éviter la dispersion, le vol et le trafic.

Enfin, les techniques de mesure employées pour répondre aux besoins exposés ci-dessus peuvent également trouver des applications dans des domaines ne mettant pas en jeu d'objets radioactifs. C'est le cas par exemple pour les mesures d'épaisseur, les contrôles de soudure, la détection d'explosifs ou de matières illicites.

Les principales méthodes de mesures nucléaires sont présentées au paragraphe suivant.

2 Le moyen : la mesure nucléaire

Les différentes techniques et méthodes mises au point pour répondre au besoin de contrôle et de caractérisation d'objets radioactifs sont regroupées sous le terme de **mesure nucléaire**. Ces méthodes de mesure peuvent être destructives ou non destructives [1, 2].

2.1 Les méthodes de mesures destructives

Les méthodes de mesures destructives, consistant à prélever un échantillon représentatif d'un objet et à en faire l'analyse, ne conservent pas l'intégrité de l'objet étudié et sont pour cela qualifiées de **destructives**.

Le but de ce type de méthodes est de déterminer de façon précise certaines caractéristiques de l'objet radioactif mesuré, comme la concentration en radionucléides (en particulier uranium et plutonium) ou la composition isotopique.

Différentes techniques permettent d'obtenir la concentration parmi lesquelles on peut citer la séparation gravimétrique, le titrage par oxydo-réduction, la spectrophotométrie alpha, la fluorescence X, le comptage alpha.

La composition isotopique peut être déterminée par spectrométrie de masse (séparation dans un champ magnétique) ou parfois par spectrométrie alpha.

2.2 Les méthodes de mesures non destructives

Les méthodes de mesures **non destructives**, au contraire des précédentes méthodes exposées, respectent l'intégrité de l'objet mesuré.

Elles ont été développées pour répondre aux demandes de mesures rapides et transportables comme le contrôle et l'inventaire des matières nucléaires. Elles sont largement utilisées au cours du cycle du combustible pour le contrôle de procédés, la sûreté/criticité, la caractérisation des matières nucléaires et des déchets radioactifs.

Elles sont souvent mises en œuvre dans les cas où le contrôle destructif ne peut être employé : impossibilité de prélever des échantillons, analyse chimique difficile, besoin d'une mesure rapide (contrôle en ligne, chaînes de production automatisées).

Elles reposent sur des techniques permettant d'observer les rayonnements émis par l'objet de façon spontanée (mesure **passive**), mais également les rayonnements induits par des sources d'irradiation extérieures (mesure **active**).

2.2.1 Les mesures passives

La mesure passive consiste à détecter les rayonnements émis spontanément par la décroissance des radioéléments présents dans l'objet radioactif. Différents types de rayonnements peuvent être détectés parmi lesquels les gamma et X, les neutrons et les particules alpha et beta. En fonction de la nature du rayonnement émis par le radioélément recherché, des détecteurs adaptés sont nécessaires.

Dans ce paragraphe sont présentés les mesures de spectrométrie gamma et le comptage neutronique passif, très employés dans le domaine de la mesure des objets radioactifs, ainsi que certaines autres méthodes de mesure passive.

2.2.1.1 La spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique de mesure consistant à détecter les rayonnements gamma émis en convertissant l'énergie qu'ils déposent dans un matériau détecteur adapté en un signal électrique. Le traitement de ces signaux permet d'obtenir un histogramme appelé spectre. Les rayonnements gamma sont émis par les radionucléides par désexcitation du noyau atomique. Ils possèdent une énergie précise (raie), caractéristique du noyau émetteur et constituent donc un moyen d'identification des radioéléments. De plus, l'aire d'une raie gamma est représentative de la quantité du radioélément émetteur, dans la mesure où sont connus les temps actifs d'acquisition, la période radioactive des isotopes mesurés, et l'intensité d'émission de la raie observée. L'analyse des spectres mesurés permet donc en théorie l'identification et la quantification des radioéléments.

Les détecteurs habituellement employés sont des matériaux semi-conducteurs (germanium hyperpur GeHP, ou dopé au lithium GeLi), ou bien des scintillateurs (NaI par exemple). Les paramètres importants pour ces mesures sont l'efficacité de détection (rapport du nombre de rayonnements détectés sur le nombre de rayonnements émis), la résolution énergétique (largeur de la raie à mi-hauteur) et le rapport pic/Compton. Ces critères conditionnent le type de détecteur choisi pour l'application visée.

D'autres paramètres sont également à prendre en compte lors des mesures par spectrométrie gamma. Le taux de comptage en entrée (nombre de coups dans le détecteur par unité de temps) conditionne par exemple la durée d'acquisition ainsi que les blindages et collimations à apporter au système de détection.

2.2.1.2 Le comptage neutronique passif

La détection des neutrons émis spontanément par les radioéléments constitue également une voie pour la caractérisation des objets radioactifs. Ces neutrons peuvent avoir différentes origines. La fission spontanée d'un noyau lourd libère plusieurs neutrons prompts (de 2 à 3 en moyenne) et est suivie de l'émission de neutrons retardés par certains produits de fission appelés précurseurs. Tous les neutrons produits lors d'une fission peuvent à leur tour créer d'autres fissions : on parle alors de fissions induites. D'autres réactions induites peuvent également produire des neutrons : réactions (α , n), (γ , n), multiplication (n, 2n) par exemple.

Le comptage neutronique passif peut être mis en œuvre de deux façons. La première est le comptage total, pour lequel tous les neutrons détectés sont comptés. La seconde est le comptage des coïncidences, pour lequel seuls les neutrons détectés en corrélation temporelle (donc émis simultanément lors de la fission d'un noyau) sont comptabilisés. Cette seconde méthode, moins sensible au bruit de fond, permet de discriminer les neutrons selon leur origine (discrimination entre les réactions (α , n) produisant un seul neutron et réactions de fission (n,f) produisant plusieurs neutrons notamment).

Le comptage neutronique passif peut être appliqué à de nombreux domaines :

- contrôle de contamination des sols (détection des neutrons provenant des réactions (α, n) indiquant la présence d'émetteurs alpha),
- contrôle de l'enrichissement de l'uranium (détection des neutrons provenant de réactions $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$ dans l' UF_6), vérification du taux de combustion d'assemblages,
- détection d'accumulation de matière fissile dans des équipements volumineux (pompes, canalisations, cuves), pour lesquels la spectrométrie gamma est inefficace,
- analyse non-destructive de colis de déchets radioactifs (fûts de volume et de densité importants).

2.2.1.3 Quelques autres méthodes passives

2.2.1.3.1 Calorimétrie

La calorimétrie est une méthode reposant sur la mesure de l'élévation de température produite dans un calorimètre par les rayonnements émis par un objet radioactif. Dans le cadre de la mesure nucléaire, son application est la mesure de la quantité de chaleur dégagée par des radionucléides.

Cette méthode est bien adaptée à la détermination de quantités importantes de plutonium et de tritium. En effet, ces éléments ont une puissance thermique suffisante pour être mesurés précisément par cette voie [2].

La calorimétrie est une des mesures non destructives les plus précises. Cependant, les temps d'acquisition nécessaires, liés aux constantes de temps thermiques, sont de l'ordre de plusieurs heures.

2.2.1.3.2 Tomographie d'émission

La tomographie d'émission est une technique d'imagerie consistant à reconstruire une image en trois dimensions (3D) de l'objet mesuré. Cette technique de mesure passive utilise des détecteurs gamma afin de réaliser des mesures de spectrométrie. La combinaison de nombreuses mesures réalisées sous différents angles et tranches permet d'obtenir la répartition des radioéléments dans l'objet mesuré.

Cette technique est couramment employée dans le domaine médical pour déterminer la répartition de la radioactivité d'un traceur dans un organe. Elle est également utilisée dans le domaine des déchets nucléaires pour obtenir des cartes d'activité d'un colis.

2.2.2 Les mesures actives

Les méthodes de mesure active reposent sur l'utilisation d'une source extérieure de particules pénétrantes pour irradier l'objet à mesurer. Deux types de sources extérieures sont communément utilisées, en raison de leur bonne capacité de pénétration : les sources gamma et les sources de neutrons.

Ces particules provoquent des réactions dans la matière irradiée, qui elles-mêmes produisent des rayonnements et des particules secondaires (gamma et neutrons notamment). Leur détection permet de déterminer la masse de matière radioactive.

La mesure active est généralement utilisée dans les cas suivants :

- il n'y a pas d'émission spontanée de la part de l'objet radioactif, ou pas suffisamment pour une mesure passive précise, ou l'émission spontanée ne peut pas être distinguée du bruit de fond ;
- l'émission spontanée n'est pas assez intense pour permettre une mesure dans un temps raisonnable ;
- l'atténuation de l'émission spontanée est trop forte pour permettre sa mesure ;
- la mesure active offre généralement de meilleures performances que la mesure passive.

2.2.2.1 Utilisation d'une source photonique

2.2.2.1.1 Densitométrie par transmission

La densitométrie consiste à mesurer la densité d'un objet en déterminant l'atténuation qu'il produit sur un rayonnement photonique mono-énergétique (X ou gamma). Une source de photons mono-énergétiques produit un faisceau d'intensité I_0 qui est atténué à travers l'objet. En mesurant la transmission (rapport de l'intensité résiduelle I du faisceau à la sortie de l'objet sur l'intensité initiale I_0 en entrée), il est possible de remonter à la masse volumique de la façon suivante [2] :

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\frac{\mu}{\rho} \cdot \rho z\right)$$

Avec :

I_0 : intensité de la source de photons,

I : intensité mesurée,

μ/ρ : coefficient d'atténuation massique (cm^2/g),

ρ : densité (g/cm^3)

z : distance traversée (cm).

Les mesures de densitométrie peuvent être réalisées à une seule énergie (cas des mesures de concentrations et d'épaisseur) ou à plusieurs énergies (cas des mélanges de deux matériaux de numéro atomique Z très différents, comme c'est le cas pour l'ostéodensitométrie en médecine par exemple).

2.2.2.1.2 Gamma-fluorescence X

La gamma-fluorescence X est une technique de mesure consistant à utiliser une source gamma pour exciter les atomes de la matière à mesurer. Le réarrangement électronique consécutif à cette excitation conduit à l'émission de rayonnements X caractéristiques des atomes émetteurs. La source utilisée dépendra de l'application visée : il existe en effet des

sources isotopiques émettant un rayonnement discret et des sources continues comme les générateurs de rayons X.

Cette technique est complémentaire de la densitométrie. Il est en effet relativement simple d'utiliser la même source gamma pour déterminer la densité du matériau et de mesurer dans le même temps les rayonnements X produits par la source interrogatrice dans le matériau traversé.

Une application particulière de la gamma-fluorescence X dans le cadre des colis de déchets consiste à déterminer la teneur en uranium du colis [3]. La source gamma interrogatrice est ici le césium 137 contenu dans le colis lui-même, et ce sont les rayonnements X émis par l'uranium qui sont détectés. On parle alors d'auto-fluorescence X, puisque la source d'interrogation est intimement mélangée à la matière à interroger. Cette application particulière pourrait en fait être classée dans la catégorie des mesures passives, puisque dans ce cas précis, il n'y a pas utilisation d'une source de rayonnement externe.

2.2.2.1.3 Interrogation Photonique Active (I.P.A.)

L'utilisation d'une source gamma d'énergie élevée permet d'induire des réactions photonucléaires, notamment dans les radioéléments lourds. Ces réactions ont un seuil nécessitant des gamma d'énergie supérieure au seuil de réaction (environ 6 MeV pour les photofissions). Les sources utilisées sont alors des accélérateurs d'électrons. Un accélérateur de type LINAC (LINear ACcelerator) est constitué d'un ensemble de cavités accélératrices permettant de conduire une onde électromagnétique. En dimensionnant les cavités de façon à ce que les électrons injectés soit toujours en phase avec le champ accélérateur, on parvient à les accélérer jusqu'à des énergies cinétiques élevées. Les électrons sont ensuite ralentis dans une cible adaptée de numéro atomique élevé (tungstène, tantale...) et produisent un fort rayonnement de freinage (Bremsstrahlung).

Les réactions photonucléaires utilisées peuvent être de différents types :

- les réactions de photofission (γ, f) sont associées à la détection de neutrons. Cette technique est particulièrement intéressante car tous les noyaux lourds sont photofissiles ;
- les différentes réactions photonucléaires (γ, n), (γ, p), ($\gamma, 2n$), ($\gamma, 2p$), permettent d'activer des radioéléments et de mesurer ensuite les gamma de désactivation émis ;
- les réactions de diffusions inélastiques (γ, γ') peuvent permettre de créer des isomères de période suffisamment longue pour détecter leur rayonnement gamma de désexcitation.

Leurs principales applications sont la caractérisation de colis de déchets radioactifs, que ce soit par photofission simple ou par double interrogation neutron-photon [4].

2.2.2.1.4 Imagerie par transmission gamma

L'imagerie par transmission gamma permet d'obtenir des images d'objets par radiographie gamma, ou par tomographie gamma. De même que pour la densitométrie, une source gamma mono-énergétique est utilisée pour réaliser des mesures par transmission. L'objet est déplacé devant le détecteur, et son image en deux dimensions (2D) est obtenue par tranches successives.

En combinant au moyen d'algorithmes adaptés des images 2D obtenues par transmission sous plusieurs angles, il est également possible de réaliser une tomographie des objets, par

reconstruction d'une image en trois dimensions (3D) donnant la répartition des densités à l'intérieur de l'objet [5].

Cette technique de tomographie par transmission est mise en œuvre dans le cadre des mesures de colis de déchets radioactifs, afin d'obtenir l'information sur l'homogénéité des colis, leur densité moyenne et locale, ainsi que leur niveau de remplissage. Couplée à la tomographie d'émission, elle apporte une image de la localisation des différents radionucléides présents dans l'objet mesuré [6].

2.2.2.2 Utilisation d'une source de neutrons

2.2.2.2.1 L'Interrogation Neutronique Active

L' Interrogation Neutronique Active (I.N.A.) consiste à irradier un objet radioactif avec un flux de neutrons de manière à provoquer des réactions de fission (n, f). Les neutrons produits par la fission sont ensuite détectés et permettent de déterminer la masse de matière fissile interrogée, en se référant à des abaques d'étalonnage reliant le signal mesuré à la masse.

La fission des noyaux fissiles (^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu ...) entraîne l'émission de neutrons et de gamma prompts (émis simultanément à la fission) et retardés (émis quelques instants après la fission). Il est alors envisageable de détecter ces différentes contributions en vue d'obtenir des informations sur les noyaux à l'origine de ces émissions : neutrons prompts, neutrons retardés, gamma retardés. Les gamma prompts sont difficiles à détecter car ils sont noyés dans le bruit de fond des réactions (n, γ) dues aux neutrons interrogateurs interagissant avec le détecteur, les matériaux de la cellule de mesure ou ceux composant la matrice du colis de déchets.

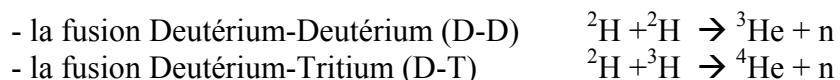
Cette méthode permet donc de quantifier une masse de contaminant fissile dans un colis de déchets radioactifs.

Les sources de neutrons utilisables sur site pour l'I.N.A peuvent être de trois types : source isotopique, générateur de neutrons ou accélérateur d'électrons ¹.

La source isotopique la plus utilisée est le californium 252 (^{252}Cf), qui possède une émission spécifique intense ($2,34 \cdot 10^{12}$ n/s/g) d'énergie moyenne 2,14 MeV par fission spontanée avec une période de 2,646 ans [2]. D'autres sources sont basées sur la réaction (α , n). C'est le cas par exemple de l'américium-béryllium (Am-Be) et de l'américium-lithium (Am-Li) pour lesquelles l'américium est émetteur alpha et le béryllium, ou le lithium, est le siège de la réaction de conversion (α , n). Ce type de source possède cependant une intensité moins élevée, de l'ordre de quelques 10^6 n/s/Ci. Leur période est par contre plus grande (433,6 ans pour ^{241}Am [2]). L'interrogation neutronique utilisant une source isotopique est associée au comptage des neutrons retardés. En effet, la source est amenée mécaniquement auprès du colis, le plus souvent à l'aide d'un câble flexible qui la pousse depuis un château de repli jusque dans la cellule de mesure. Le temps de retrait de la source après l'irradiation rend en pratique très difficile la détection des neutrons prompts. Cette technique est cependant très bien adaptée à la détection des neutrons retardés.

¹ Un générateur de neutrons est à proprement parler un type d'accélérateur de particules, puisqu'il repose sur l'accélération d'ions deutérium.

Une autre façon de produire des neutrons est non pas d'utiliser la fission spontanée des noyaux lourds mais la fusion de noyaux légers. Les deux réactions les plus utilisées sont :



Ces réactions sont employées dans les générateurs de neutrons dans lesquels des ions deutérium sont soumis à un potentiel de 100 à 300 kV. La réaction D-D produit des neutrons de 2,45 MeV et la réaction D-T des neutrons de 14 MeV. Des émissions de 10^8 n/s (GIN 26 société SODERN) à 10^{11} n/s (Génie 46 société SODERN) peuvent être atteintes en fonctionnement continu. Le générateur de type Génie 36 (société SODERN) peut atteindre $2 \cdot 10^9$ n/s en mode impulsionnel. L'émission d'un générateur de neutrons peut être arrêtée quasi instantanément. L'utilisation du mode impulsionnel (courte bouffée de neutrons répétée périodiquement) permet de détecter les neutrons prompts de fission entre les impulsions du générateur de neutrons, après disparition des neutrons interrogateurs (quelques dizaines à quelques centaines de microsecondes après arrêt de l'émission). D'autre part, le cycle irradiation-comptage peut être répété un très grand nombre de fois en utilisant le générateur en mode impulsionnel, ce qui permet d'obtenir rapidement de meilleures statistiques de comptage qu'en effectuant un comptage unique après plusieurs cycles d'irradiation. Le signal utile mesuré est proportionnel à la masse fissile présente et permet donc de déterminer la quantité de contaminant.

Enfin, il est également possible de produire un flux élevé de neutrons en utilisant un accélérateur linéaire d'électrons. Les photons produits dans la cible de Bremsstrahlung sont ensuite convertis par réaction (γ, n) dans une deuxième cible en béryllium (utilisé pour son seuil de conversion faible : 1,67 MeV) pour produire des neutrons d'énergie moyenne de l'ordre de 3 à 4 MeV [2, 4].

Les applications de l'I.N.A. sont principalement la quantification de matière nucléaire (inventaire, contrôle de criticité, caractérisation de déchets) ainsi que le contrôle de procédé et de qualité des matériaux nucléaires.

2.2.2.2.2 La spectrométrie gamma active

Les termes de spectrométrie gamma active recouvrent le domaine de la spectrométrie des rayonnements gamma induits par des réactions neutroniques.

De nombreuses réactions mettant en jeu des neutrons peuvent produire des rayonnements gamma. Ces rayonnements gamma constituent, de même que ceux produits par émission spontanée, une véritable signature des noyaux émetteurs. Ils permettent donc leur identification, et peuvent également conduire à leur quantification.

Les réactions mises en jeu sont de plusieurs types : réactions de capture radiative (n, γ), diffusions inélastiques ($\text{n}, \text{n}'\gamma$), émission de gamma consécutives aux réactions de fissions induites par I.N.A. (gamma prompts de fission, gamma retardés de fission) par exemple.

Les principales difficultés de mise en oeuvre de cette méthode résident dans le fort bruit de fond gamma engendré par la source de neutrons. En effet, les neutrons interrogateurs activent non seulement les matériaux d'intérêt, mais également tous ceux constituant les structures, l'objet à caractériser et le système de détection. Ceci implique :

- un fort bruit de fond gamma (difficulté de gérer de forts taux de comptage),
- une détérioration possible du système de détection soumis à l'irradiation neutronique.

Toutefois, les potentialités de cette méthode laissent entrevoir une large gamme d'applications futures, dont la détection et la mesure de nombreux noyaux possédant de fortes sections efficaces de réactions neutroniques et des caractéristiques d'émission appropriées.

2.2.3 Avantages et inconvénients des différents types de mesure

Chaque type de mesure nucléaire possède ses atouts et ses contraintes. Le type de mesure à utiliser dans un cas donné sera fonction des caractéristiques de l'objet radioactif considéré. Toutefois, on peut mentionner, de manière non-exhaustive, les principaux avantages et inconvénients des différentes méthodes de mesure.

Les méthodes de mesures destructives sont très largement employées dans toute l'industrie nucléaire pour l'excellente précision qu'elle permettent d'obtenir. Elles engendrent cependant des déchets supplémentaires du fait de leur nature : solutions de dilution, de séparation, matériel de laboratoire, etc. D'autre part, la représentativité de l'échantillon peut être mise en question dans le cas d'objets de grand volume ou hétérogènes. La précision finale de la valeur annoncée dépendra de cette représentativité.

Les mesures non destructives présentent plusieurs avantages par rapport aux mesures destructives :

- elles réduisent souvent l'exposition du personnel aux rayonnements,
- elles sont plus rapides,
- elles sont généralement d'un coût inférieur.

Cependant, elles sont généralement moins précises que les mesures destructives. Les sources d'incertitude liées spécifiquement à la mesure non-destructive sont en effet pénalisantes. La méconnaissance de l'objet à caractériser en est la cause majeure. Elle entraîne la formulation d'hypothèses sur l'objet à mesurer : densité, homogénéité, nature et composition notamment. Des moyens existent pour améliorer la connaissance *a priori* de l'objet :

- utilisation de la mesure destructive pour expertiser un objet d'un lot ;
- utilisation de techniques complémentaires (par exemple les techniques d'imagerie pour obtenir la densité et la répartition des matériaux dans un objet).

Les mesures passives présentent généralement l'avantage d'une grande simplicité de mise en œuvre. Cependant, elles sont tributaires du niveau d'émission spontané des objets radioactifs étudiés et de leur densité.

Les mesures actives permettent généralement d'obtenir une information que la simple mesure passive n'aurait pas pu donner, ou qu'elle n'aurait permis d'obtenir qu'en un temps prohibitif pour des applications industrielles. Elles présentent l'inconvénient majeur de nécessiter des appareillages lourds quel que soit le type de source employée. Le paragraphe suivant traite le cas particulier de l'I.N.A.

3 Sources de limitations liées à l'I.N.A.

Ce paragraphe présente les principales sources d'incertitudes liées à la mesure par I.N.A. Ces limitations sont liées à la physique du transport des différents types de particules dans les matériaux : neutrons et photons en particulier. D'autre part, il convient de souligner que les effets s'appliquent aux neutrons interrogateurs comme aux particules induites : les incertitudes se cumulent donc. Ces effets sont abordés en traitant l'exemple de la mesure d'un colis de déchets, composé de matière non-radioactive (matrice) dans laquelle est répartie du contaminant. L'accent est ensuite mis sur les incertitudes liées à la matrice elle-même, l'objet de cette thèse étant de développer une méthode de correction de ces effets de matrice.

3.1 Les incertitudes de mesure

Quand un colis de déchets est caractérisé par I.N.A., la méthode employée pour déterminer la masse de matière fissile qu'il contient consiste à choisir un coefficient d'étalonnage représentatif reliant la masse de matière fissile au signal neutronique mesuré. Ces coefficients sont préalablement appris sur des colis-types de composition connue proche de celles des colis à étudier.

Cependant, la connaissance du contenu de la matrice est imprécise et se base sur des éléments d'appréciation extérieurs à la mesure par I.N.A. : masse (ou densité) du fût, description du colis au moment du remplissage, éventuellement caractérisation antérieure par d'autres moyens de mesure. La masse finalement annoncée est donc très souvent surestimée pour tenir compte des différents effets influant sur la mesure.

Les incertitudes de mesure ont plusieurs origines. Elles proviennent de l'influence sur les flux de neutrons interrogateurs et de fission de la nature de la matrice d'une part et du contaminant d'autre part. La figure 1 résume schématiquement les effets identifiés. **Dans le cadre de cette thèse, seuls les effets de la composition et de la densité de matrices homogènes sont étudiés.**

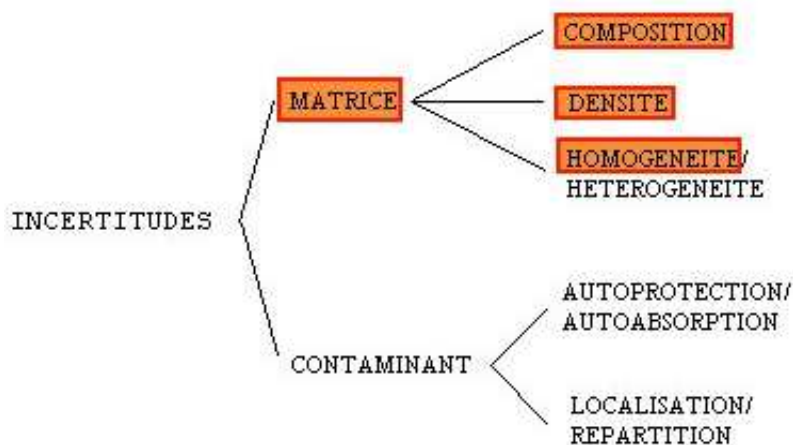


Figure 1 : Origines des incertitudes de mesure en I.N.A.

3.1.1 Influence du contaminant

Deux propriétés liées au contaminant peuvent influencer sur le résultat d'une mesure par I.N.A. : l'**autoprotection** et l'**autoabsorption**, dues à la section efficace d'absorption neutronique du contaminant. L'autoabsorption est la capacité que possède le contaminant à faire écran aux

neutrons interrogateurs thermiques. L'autoabsorption est la capacité que possède le contaminant à absorber une partie du flux de neutrons de fission produit en son sein. Dans les deux cas, ces effets conduisent à sous-estimer la masse de contaminant dans le colis. Il peut également se produire, dans le cas de contaminants de forte masse, un effet de multiplication dû à des fissions en cascade.

La répartition du contaminant dans le colis peut également influencer sur le signal mesuré (effet de localisation). En effet, le contaminant présent en périphérie du colis sera plus sensible à l'interrogation que celui situé en profondeur dans le fût. Cela est pris en compte dans les études de **localisation** du contaminant.

3.1.2 Influence de la nature de la matrice

La connaissance de la matrice est déterminante dans la mise en œuvre des mesures par I.N.A. En effet, de grandes quantités de matière (jusqu'à plusieurs dizaines de kilogrammes) s'interposent entre les neutrons et le contaminant. Les noyaux des constituants de la matrice possèdent des propriétés de modération et d'absorption vis-à-vis des neutrons, qui diffèrent selon la composition et la densité du matériau concerné. Le flux de neutrons interrogateurs thermiques peut alors être grandement perturbé par la matrice. A un degré moindre, car les sections efficaces mises en jeu sont plus faibles, le flux de neutrons rapides de fission est lui aussi soumis à des interactions avec les constituants de la matrice. Dans le cadre de l'interrogation de fûts de grand volume, le flux interrogateur n'est pas capable de sonder avec la même efficacité la totalité du volume du fût, et le signal neutronique mesuré peut alors être mal interprété. Dans la plupart des cas, l'effet de la matrice conduit à une grande incertitude sur la valeur de la masse de contaminant annoncée. Ces effets sont détaillés dans le paragraphe suivant.

3.2 *Le cas pénalisant des effets de matrice*

3.2.1 Nature et position du problème

Les effets de la matrice sont essentiellement de deux types : **modération** et **absorption**.

La modération influe sur le ralentissement des neutrons de la source d'interrogation et sur l'atténuation du signal dû aux neutrons de fission.

L'absorption réduit la durée de vie du flux thermique interrogateur. Ces effets se traduisent par une variation des caractéristiques du flux interrogateur et du rendement de détection de la cellule de mesure I.N.A. en fonction de la composition de la matrice.

D'autre part, si la nature (composition, densité) de la matrice a un impact important sur le signal, la répartition de la matière à l'intérieur du colis joue également un rôle. Si le contaminant est réparti de façon inhomogène dans le colis, sa position aura un effet sur la détermination de sa masse. En effet, la matrice, même si elle est homogène, ne subit pas l'interrogation de façon homogène (le flux neutronique s'atténue avec l'épaisseur traversée). Par ailleurs, dans le cas où la matrice n'est pas homogène, l'effet sur le flux interrogateur conduit de nouveau à une incertitude sur la masse annoncée.

Il est donc nécessaire de prendre en compte la nature de la matrice dans le cadre de la mesure par I.N.A. C'est le cadre des études dites de « correction de matrice ».

Dans le cadre de cette thèse, les milieux concernés sont les matrices plastiques (rouleau de vinyle, gants, surbottes par exemple) et la cellulose (papier et coton notamment). Ces matières contiennent une grande quantité d'hydrogène et éventuellement de chlore, qui possèdent tous

deux des propriétés importantes vis-à-vis des neutrons. L'hydrogène est en effet un excellent modérateur. Le chlore possède quant à lui une section efficace d'absorption élevée (32,3 barns [7] pour le chlore naturel à l'énergie thermique), qui en fait un poison en I.N.A., comme on le verra sur l'exemple de la cellule PROMETHEE 6 (cf. § 4).

3.2.2 Etat de l'art des méthodes de correction

Dans cette partie est présenté le principe général de correction décrit dans la littérature. L'idée retenue dans le cadre de la thèse est un peu différente de ce principe puisqu'elle vise non pas à étudier l'influence globale de la matrice sur les flux de neutrons mais repose sur une identification et une quantification des éléments d'intérêt présents dans les matrices. Cette approche nouvelle est décrite dans le chapitre 2.

L'idée généralement développée en vue de la correction des effets de matrice est d'apporter un facteur de correction au signal utile mesuré, qui dépend de la nature de la matrice. De nombreuses formulations ont été proposées qui reposent sur la définition de facteurs multiplicatifs représentatifs des différents effets, selon une équation de la forme suivante :

$$S_{\text{corr}} = S_{\text{mes}} \cdot C_m \cdot C_a \cdot C_h \cdot C_l \quad (\text{eq. 1})$$

Avec

S_{corr} : signal utile corrigé des effets influant sur le signal mesuré (c/s)

S_{mes} : signal utile mesuré (c/s)

C_m : coefficient de correction des effets de matrice

C_a : coefficient de correction des effets d'autoprotection/autoabsorption du contaminant

C_h : coefficient de correction des effets d'inhomogénéité de la matrice

C_l : coefficient de correction des effets de localisation du contaminant

Dans ce type de formulation, l'éventuelle corrélation entre différents effets n'est pas prise en compte. La forme que prennent ces différents coefficients est très variable selon les études. Cependant, plusieurs hypothèses peuvent simplifier l'équation (1) : matrice homogène, source homogènement répartie, effets d'autoprotection/autoabsorption négligeables. Reste alors le coefficient C_m représentatif de l'influence de la nature des constituants de la matrice.

Parmi les méthodes de correction développées depuis le milieu des années 1980, beaucoup reposent essentiellement sur la caractérisation de l'influence de la matrice en terme de modulation et d'absorption. Cela est réalisé en étudiant la variation induite par la matrice sur les flux de neutrons interrogateurs et de fission à l'aide de détecteurs de neutrons spécifiques (moniteurs). Une autre voie d'amélioration consiste à combiner des résultats provenant de différentes méthodes de mesure (mesures neutroniques et tomographie par exemple).

3.2.2.1 Correction à l'aide de moniteurs

L'utilisation de détecteurs sensibles aux neutrons thermiques (détecteurs nus) ou aux neutrons rapides (détecteurs sous CH_2 blindés au cadmium et/ou au B_4C) rendent possible l'étude de l'influence de la matrice sur le flux des neutrons interrogateurs et des neutrons rapides issus des fissions. Cette influence est quantifiée soit par l'analyse des signaux obtenus (pentes, ordonnées à l'origine...) soit par comparaison des signaux de différents moniteurs entre eux ou avec le signal utile. Trois types de détecteurs sont utilisés :

- les « moniteurs de flux » : détecteurs nus ou sous CH₂ (et/ou cadmium en fonction de l'application) adaptés au contrôle de l'émission du générateur,
- les « moniteurs de fût » : détecteurs nus ou sous CH₂ collimatés par du cadmium destinés à quantifier les propriétés d'absorption et de modération du colis,
- les « détecteurs du signal utile » : détecteurs sous CH₂ blindés au cadmium et/ou au B₄C destinés à compter les neutrons rapides issus des fissions induites dans le contaminant par les neutrons interrogateurs thermalisés.

Ces études permettent de définir des facteurs de correction pour l'absorption et la modération, puis de les combiner en un seul facteur représentatif de l'effet de matrice. Dans la plupart des cas, une équation proche de (1) est alors proposée.

On trouve dans la littérature les formulations suivantes, rassemblées dans le rapport [8]:

$$M = S_u.F1.F2.F3.Iso.Calib \quad [9]$$

Avec :

S_u : signal utile en actif (c/s)

F1 : facteur de correction de matrice pour l'absorption

F2 : facteur de correction de matrice pour la modération

F3 : facteur de correction des effets d'autoprotection/autoabsorption

Iso : facteur de correction d'isotopie

Calib : coefficient d'étalonnage

On retrouve cette formulation dans des travaux similaires :

$$M = S_u.ABS.MOD \quad [10]$$

Avec :

$ABS = 0,746/M_{mes}$ et $MOD = 0,760/M_{corr_abs}$

M_{mes} : masse mesurée brute (g)

M_{corr_abs} : masse corrigée des effets d'absorption (g)

Ou encore :

$$M = k.S.FC.Iso.H \quad [11]$$

S : rapport du signal utile des détecteurs sous cadmium et du signal issu du moniteur de flux

FC : facteur de correction des effets de matrice

k : coefficient d'étalonnage en g/(c/s)

Iso : facteur de correction de l'autoprotection du ²³⁹Pu

H : facteur de correction d'inhomogénéité

On trouve aussi :

$$M = 2,65.S_u.(S_{mon})^{-0,93} \quad [12]$$

S_u : signal utile issu de l'ensemble des détecteurs (c/s)

S_{mon} : signal issu du moniteur de fût (c/s)

Dans ce dernier cas, le facteur de correction est simplement basé sur l'utilisation d'un moniteur de fût. La correction appliquée traite le signal de manière globale, sans expliciter les influences respectives de la modération et de l'absorption.

3.2.2.2 Application dans la cellule d'I.N.A. PROMETHEE 5

Une première étude de mise au point d'une méthode de correction de matrice a été réalisée en 1994 par simulation et expérimentalement dans PROMETHEE 5, une version antérieure de l'actuelle cellule I.N.A. PROMETHEE 6 [13]. L'influence de la nature et de la densité de la matrice sur le taux de fission, le rendement de détection et le signal utile dans différents fûts de 118 litres a été étudiée par simulation à l'aide du code de calcul MCNP (Monte Carlo N Particles [14]).

Les résultats de ces calculs conduisent à décrire l'influence de la matrice en terme de modération (coefficient MOD) et en terme d'absorption (coefficient ABS). Les coefficients sont choisis de façon à obtenir un fort contraste entre les différentes matrices en utilisant les signaux de détecteurs spécifiques placés à l'intérieur de la cellule de mesure.

Le coefficient ABS est déterminé à partir des signaux C1, C2, C3 de trois détecteurs sensibles aux neutrons thermiques placés l'un au-dessus de l'autre dans un coin de la cavité de mesure PROMETHEE 5.

$$ABS = \frac{1}{\sum_{i=1}^3 C_i}$$

Le coefficient MOD est déterminé à partir du signal C d'un bloc de détection sensible aux neutrons rapides placé dans la paroi de la cellule à l'opposé du générateur de neutrons, de façon à quantifier les propriétés modératrices en s'intéressant au signal émis immédiatement après le tir du générateur. En effet, si la matrice est trop modératrice, les neutrons traversant le colis ne posséderont plus assez d'énergie pour passer la barrière de cadmium du détecteur.

$$MOD = \frac{1}{C}$$

Le coefficient ABS varie en fonction des matrices chlorées étudiées de 0,251 (latex) à 0,739 (PVC), le rôle du chlore étant ainsi mis en évidence dans l'absorption (cf. tableau 1). Le coefficient MOD est le plus élevé (0,815) pour la matrice la plus hydrogénée (composite) et le moins élevé (0,410) pour le fût vide.

Matrice	Masse (kg)	ABS (u.a)	MOD (u.a)
PVC	12	0,739	0,564
Cellulose	11	0,236	0,596
Latex	15	0,251	0,648
Composite	26	0,433	0,815
Zircaloy	26	-	0,52
Inox	46	-	0,53
Fût vide	0	-	0,41

Tableau 1 : Coefficients de caractérisation de matrices obtenus en [13].

A partir des coefficients présentés dans le tableau 1, il est préconisé de définir des coefficients de correction du taux de fission FCM_{TF} et de correction du rendement de détection FCM_E . A partir de ces deux coefficients, il est alors défini un coefficient global de correction de matrice FCM (Facteur de Correction de Matrice).

$$\begin{aligned} \text{FCM}_{\text{TF}} &= \text{ABS}^{\alpha} \cdot \text{MOD}^{\beta} \\ \text{FCM}_{\epsilon} &= \text{MOD}^{\gamma} \\ \text{FCM} &= \text{FCM}_{\text{TF}} \cdot \text{FCM}_{\epsilon} \end{aligned}$$

Les coefficients α , β et γ sont à déterminer par des mesures d'étalonnage. Le facteur FCM_{TF} doit permettre de corriger une variation du taux de fission d'un facteur 5 selon les calculs MCNP. Au vu des plages de variation de ABS et MOD, on s'attend à des valeurs $\alpha > 1$ et $\beta \geq 1$. Les valeurs du rendement de détection variant d'au plus 35 %, on s'attend à $0 < \gamma < 1$.

Enfin, il serait possible de simplifier le problème en classant les matrices en grandes familles selon leur caractère modérateur et/ou absorbant. Par exemple, le coefficient MOD permettrait de distinguer les matrices hydrogénées des non-hydrogénées (métalliques), et le coefficient ABS permettrait de séparer parmi les matrices hydrogénées celles qui contiennent du chlore de celles qui n'en contiennent pas. On irait ainsi vers la reconnaissance de différents types de matrices.

Cette étude menée par modélisation a permis de montrer l'intérêt théorique d'une méthode de correction des effets de matrice utilisant des détecteurs de neutrons dans une cellule d'I.N.A. Elle a également mis en évidence les limites d'une telle approche, notamment le fait que la composition de la matrice reste inconnue et qu'il serait donc pertinent de chercher à la caractériser.

3.2.2.3 Conclusion sur le principe général de correction

Les idées développées jusqu'à présent conduisent à la correction des effets de matrices par adjonction d'un coefficient multiplicatif corrigeant le signal neutron mesuré. Ce facteur correctif peut lui-même être divisé en plusieurs facteurs représentatifs des différents effets induits par la matrice sur le flux interrogateur et/ou le flux de neutrons de fission. Dans le cas de l'I.N.A., ces facteurs de correction peuvent être déterminés à partir des signaux neutroniques obtenus par des moniteurs dédiés placés dans la cellule. Les facteurs sont alors définis à partir de rapports de signaux.

L'utilisation d'autres méthodes de mesure combinées à l'I.N.A. permet d'améliorer ses performances. Cependant, ces méthodes (comme la tomographie) supposent l'utilisation d'instruments autres que la cellule I.N.A. Il apparaît donc intéressant de réaliser auprès de la cellule d'I.N.A. des mesures complémentaires qui permettraient de corriger les effets de matrice sans avoir recours à d'autres installations lourdes. Ainsi, l'éventuelle implantation de la méthode de correction obtenue dans des cellules de mesure I.N.A. industrielles ne nécessiterait que peu de modifications des cellules existantes.

4 Illustrations des performances et limitations de l'I.N.A : la cellule PROMETHEE 6

La cellule d'irradiation-mesure par I.N.A. du SCCD/LDMN baptisée PROMETHEE 6 permet de déterminer de faibles masses d'émetteurs alpha fissiles dans des fûts de 118 litres, en vue de leur classification. Dans le cas du stockage en surface, l'activité ne doit pas dépasser 3,7 GBq[α] par tonne de déchets conditionnés. Le critère d'incinération serait quant à lui de l'ordre de 50 Bq[α] par gramme de déchets bruts. Afin de disposer d'un moyen de mesure capable de détecter des masses de contaminant alpha inférieures à cette limite, la cellule PROMETHEE a été conçue, puis améliorée. La version actuelle de la cellule est la version 6.

4.1 Description de la cellule

La cellule PROMETHEE 6 est de forme parallélépipédique, de dimensions globales 1,4 x 1,8 x 1,6 m³ (figure 2). Elle est composée :

- de parois en graphite, matériau thermalisant les neutrons interrogateurs émis à 14 MeV tout en minimisant l'absorption. L'utilisation de ce matériau est favorable à une durée de vie élevée du flux neutronique interrogateur grâce à sa faible section efficace de capture (3,37 mb à l'énergie thermique [7]),
- d'un blindage de 10 cm de polyéthylène sur toutes les faces externes. Il réduit le bruit de fond et participe à la radioprotection vis-à-vis de l'extérieur,
- de trois blocs de détection occupant deux faces latérales et la porte de la cellule. Ils sont constitués de détecteurs proportionnels à hélium de 50 mm de diamètre et de 1 m ou 50 cm de long suivant leur position. Ils sont placés dans du polyéthylène, blindé de 2 mm de cadmium sur la face tournée vers l'intérieur de la cellule et de 10 mm de B₄C (absorbeurs de neutrons thermiques) sur les autres faces. Le but de ce blindage neutrophage est de ne mesurer que les neutrons rapides issus des fissions. Au total, la cellule comporte 88 compteurs hélium,
- d'un générateur de neutrons de type GIN 26 (société SODERN), permettant d'atteindre des émissions de 10⁸ n/s par bouffées de 15 μs répétables toutes les 8 ms (fréquence de 125 Hz). Il est entouré d'une couronne en graphite qui permet de meilleures performances en terme de signal utile.

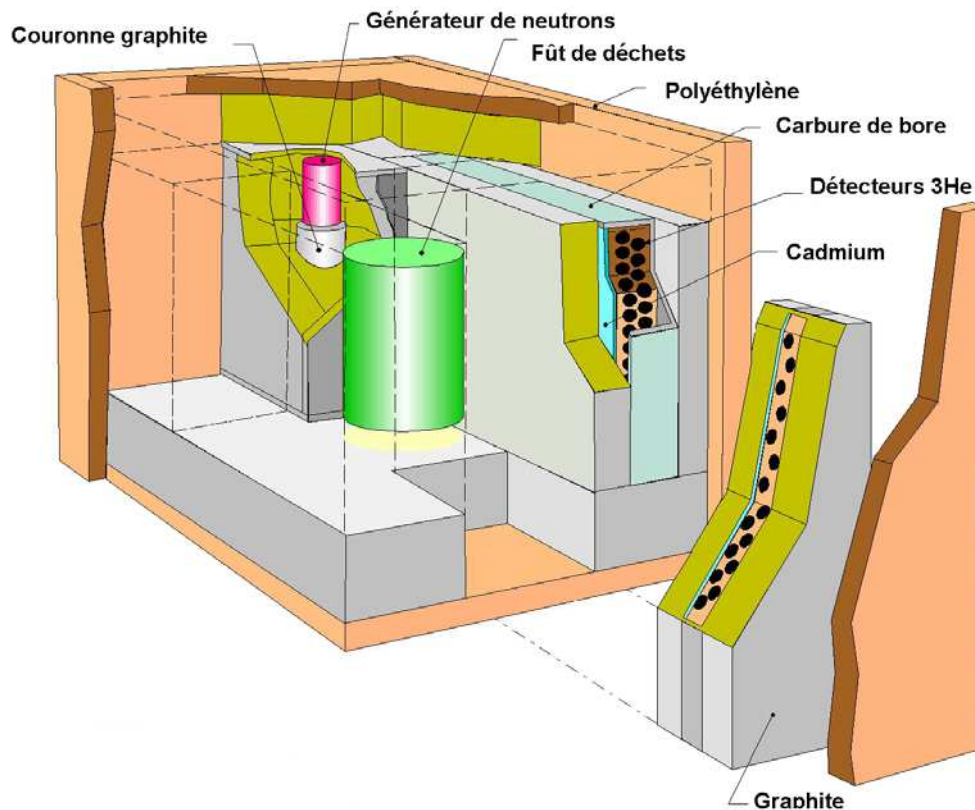


Figure 2 : Dispositif de mesure PROMETHEE 6.

Une mesure active dans PROMETHEE 6 se déroule ainsi :

- le générateur émet pendant $15\ \mu\text{s}$ une impulsion de neutrons de 14 MeV. Ces neutrons sont ralentis dans les parois en graphite de la cellule de mesure, produisant un bruit de fond important tant que des neutrons sont suffisamment rapides pour passer la barrière de cadmium des blocs de détection. Ce bruit de fond diminue exponentiellement avec une constante de temps de $19,4\ \mu\text{s}$;
- une fois les neutrons interrogateurs thermalisés dans les parois de la cellule, ils vont provoquer des fissions dans la matière fissile présente dans le fût. Le signal dû aux neutrons prompts de fission devient alors prépondérant. Il décroît lui aussi exponentiellement avec une constante de temps de $1120\ \mu\text{s}$ environ (cf. figure 3) ;
- une fois le signal issu des neutrons prompts de fissions disparu, il reste un signal quasi constant, composé du bruit de fond propre de l'installation (émission neutronique passive et émission résiduelle du générateur de neutrons) et du signal produit par les neutrons retardés. Il est alors possible de déterminer lors de la même mesure les contributions des neutrons prompts et des neutrons retardés de fission.

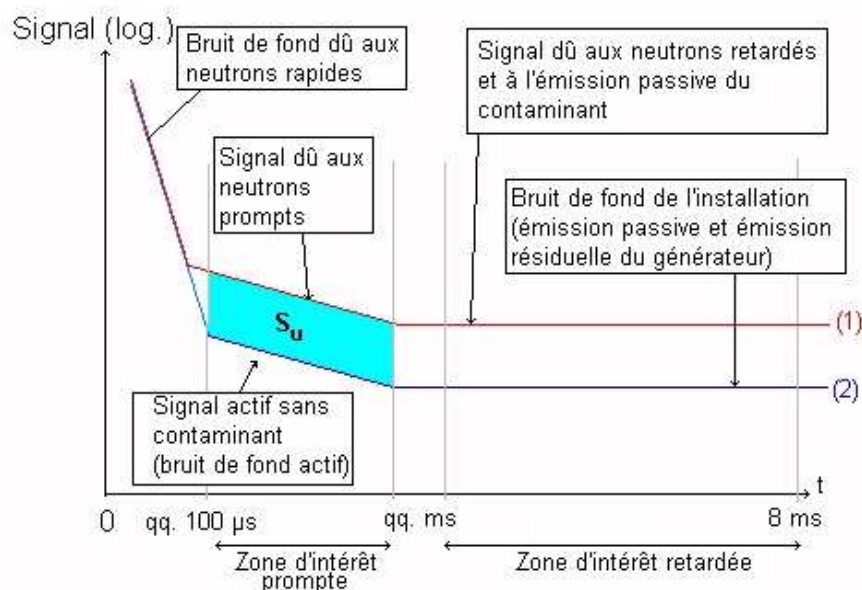


Figure 3 : Allure du signal neutron dans PROMETHEE 6, en l'absence de contaminant (2) et en présence de contaminant (1).

Les mesures réalisées dans la cellule PROMETHEE 6 sont de deux types : comptage total et comptage des coïncidences. Le comptage total consiste à détecter l'ensemble des neutrons de fission émis soit spontanément (dans le cas de la mesure passive) soit après interrogation (pour la mesure active). La mesure des coïncidences vise à détecter les neutrons émis simultanément lors d'une fission. Le nombre de neutrons prompts émis par fission varie de 1 à 9 en suivant une distribution de Maxwell dont la moyenne vaut entre 2 et 3 pour l'uranium et le plutonium. Le comptage des coïncidences permet de s'affranchir des réactions parasites n'émettant qu'un seul neutron (baisse du bruit de fond). Cependant, le comptage des coïncidences fait intervenir le carré du rendement de détection dans l'expression du signal utile, qui est par conséquent d'autant plus ténu que le rendement est petit. D'autre part, le nombre d'événements en coïncidence est plus faible qu'en comptage total, ce qui diminue le niveau de signal.

Dans le cadre de la mesure active, la somme des signaux détectés sur chaque bloc de détection dans une zone d'intérêt temporelle fixée constitue le signal brut S (ou signal total), dont il faut soustraire le bruit de fond actif BF_A (cellule vide) dû à l'utilisation d'un générateur de neutrons et le bruit de fond passif BF_P provenant éventuellement du contaminant et de l'installation pour obtenir le signal utile S_u , représentatif de la masse de contaminant présente dans le colis :

$$S_u = S - BF_A - BF_P$$

4.2 Illustration de la limitation imposée par les effets de matrice dans PROMETHEE 6

Les mesures réalisées dans PROMETHEE 6 sont effectuées sur des fûts de 118 litres, avec différents types de matrices homogènes. Le contaminant est simulé par des sources d'étalonnage de masses différentes. L'objectif des mesures est de tracer des courbes d'étalonnage reliant le signal utile neutronique mesuré S_u à la masse de contaminant fissile (U

et Pu) contenu dans les sources d'étalonnage. Les résultats de ces campagnes montrent des relations de proportionnalité entre le signal et la masse :

$$S_u = K_{et}.M$$

Avec :

S_u : signal utile (c/s)

M : masse de matière fissile exprimée en masse de plutonium 239 équivalent ($^{239}\text{Pu}_{eq}$) en mg

K_{et} : coefficient d'étalonnage en (c/s)/mg

La masse de $^{239}\text{Pu}_{eq}$ correspond à la masse de ^{239}Pu donnant le même signal actif que la source considérée, en prenant en compte les sections efficaces de fission et les multiplicités respectives de ^{239}Pu et ^{241}Pu :

$$M = ([^{239}\text{Pu}] + 1,38.[^{241}\text{Pu}]) . M_{Pu}$$

Avec :

M : masse de ^{239}Pu équivalent (mg)

M_{Pu} : masse de Pu (mg)

$[]$: fraction isotopique

Les résultats obtenus au LDMN jusqu'ici présentent une plage de variation importante des coefficients d'étalonnage en fonction de la nature des matrices homogènes mesurées. Le tableau 2 les résume. Pour une émission de $2,4.10^9$ n/s (Génie 36, SODERN), une variation d'un facteur 50 (resp. 58) entre les coefficients d'étalonnage pour une matrice cellulose ($d = 0,144 \text{ g/cm}^3$) et pour une matrice PVC ($d = 0,253 \text{ g/cm}^3$) en comptage total (resp. en comptage des coïncidences) ont été observés.

Coefficient d'étalonnage (c/s)/mg($^{239}\text{Pu}_{eq}$)	Cellulose $D = 0,14 \text{ g/cm}^3$	PVC $d = 0,253 \text{ g/cm}^3$
Comptage total	$148,5 \pm 3,6$	$2,94 \pm 0,12$
Comptage des coïncidences	$15,54 \pm 0,29$	$0,269 \pm 0,012$

Tableau 2 : Illustration de la variation du coefficient d'étalonnage I.N.A. en fonction de la nature et de la densité de la matrice [15].

La Masse Limite de Détection (MLD) (resp. Activité Limite de Détection (ALD)) est la valeur de la masse (resp. l'activité) mesurée correspondant à une probabilité donnée d'être détectée, c'est-à-dire de donner une valeur supérieure au seuil de décision (cf. annexe 2). De façon générale, les limites de détection en comptage total (LD_{total}) et en comptage en coïncidence (LD_{coinc}) peuvent s'exprimer de la façon suivante :

$$LD_{total}(s^{-1}) = \frac{1}{t \cdot k_T} \left(1 + \sqrt{2t(B_a + B_0)} \right) \quad (2)$$

$$LD_{coinc}(s^{-1}) = \frac{1}{t \cdot k_C} \left(1 + \sqrt{2t(R_a + R_0 + 2A)} \right) \quad (3)$$

Avec :

t : durée d'acquisition (s),

k_T et k_C : coefficients d'étalonnage en comptage total et en comptage en coïncidence,

B_a et B_0 : bruits de fond actif et passif en comptage total (c/s),

R_a et R_0 : bruits de fond réels actif et passif en comptage en coïncidence (c/s),

A : coïncidences fortuites (c/s).

Les valeurs trouvées dans PROMETHEE 6 (avec un niveau de confiance de 97,5%) sont présentées dans le tableau 3, pour une source est placée au centre du fût et dans le cas d'une source répartie de façon homogène, tant en comptage total qu'en comptage des coïncidences.

Ces résultats montrent une grande dispersion en fonction de la nature et de la densité de la matrice. Les résultats les plus sensibles sont obtenus pour la matrice cellulose, ne comportant pas de chlore. L'impact du chlore est mis en évidence par la variation de la MLD entre les deux matrices PVC : celle-ci augmente en effet avec la quantité de chlore. De même, la comparaison entre PVC et EVA (EthylVinylAcetate) de densité 0,253 g/cm³ démontre le rôle limitant du chlore sur les performances de PROMETHEE 6 : la MLD est 19 fois (resp. 3,7 fois) plus faible pour l'EVA en comptage total source au centre (resp. source homogène).

Matrice	Comptage total				Comptage des coïncidences			
	Source au centre		Source homogène		Source au centre		Source homogène	
	MLD (mg ²³⁹ Pu _{eq})	ALD (Bq.g ⁻¹)	MLD (mg ²³⁹ Pu _{eq})	ALD (Bq.g ⁻¹)	MLD (mg ²³⁹ Pu _{eq})	ALD (Bq.g ⁻¹)	MLD (mg ²³⁹ Pu _{eq})	ALD (Bq.g ⁻¹)
Vide	0,11	---	0,12	---	0,073	---	0,078	---
Cellulose 0,144 g/cm ³	0,096	85	0,12	100	0,065	57	0,079	69
Cellulose * 0,144 g/cm ³	0,024	30	0,03	37	0,036	45	0,045	56
PVC 0,180 g/cm ³	1,5	1100	0,53	370	1,0	710	0,35	250
PVC 0,253 g/cm ³	3,4	1700	0,7	350	3,0	1500	0,63	320
PVC * 0,253 g/cm ³	1,1	770	0,23	160	1,8	1200	0,38	260
EVA 0,254 g/cm ³	0,18	90	0,19	95	0,21	100	0,23	110
Métal 0,263 g/cm ³	0,3	140	0,25	120	0,23	110	0,19	90

* Emission de la source : $2,4 \cdot 10^9$ n/s au lieu de $1,6 \cdot 10^8$ n/s

Tableau 3 : Variation de la masse et de l'activité à la limite de détection en fonction du type de matrice [15].

En résumé, les tableaux 2 et 3 illustrent la forte pénalisation provenant des effets de matrice sur la mesure par I.N.A. dans PROMETHEE 6. Dans le cas d'un colis réel, en l'absence d'informations sur la nature de la matrice, il conviendrait de prendre en compte le coefficient d'étalonnage le plus pénalisant (éventuellement majoré d'un facteur multiplicatif de sécurité). L'intérêt de connaître au mieux la composition réelle de la matrice est ainsi mis en évidence. En effet, la connaissance de la composition de la matrice permettrait de choisir au mieux le coefficient d'étalonnage la plus représentatif possible, et réduirait ainsi l'incertitude associée à ces effets.

4.3 Illustration des limitations imposées par d'autres effets

4.3.1 Incertitudes de position

La réponse à l'interrogation neutronique varie en fonction de la position de la matière fissile interrogée. Pour illustrer ceci, le tableau 4 indique la variation minimale et maximale exprimée en % observée par rapport à la réponse en configuration homogène, ainsi que l'écart-type sur la distribution des masses ponctuelles conduisant au même signal que la répartition homogène du contaminant.

Les matrices cellulose et métal montrent peu d'effet lié à la position. Les matrices PVC sont les plus pénalisantes vis-à-vis de l'effet de position. La position la plus pénalisante est située au milieu du fût, difficilement interrogé par les neutrons du fait de la forte absorption du chlore.

Matrice	Δ_{\min} (%)	Δ_{\max} (%)	σ_{position} (%)
Vide	- 6,4	+ 14	5,4
Cellulose 0,144 g.cm ⁻³	- 17	+ 28	12
PVC 0,180 g.cm ⁻³	- 42	+ 184	64
PVC 0,253 g.cm ⁻³	- 46	+ 383	118
EVA 0,253 g.cm ⁻³	- 23	+ 127	68
Métal 0,263 g.cm ⁻³	- 13	+ 20	12

Tableau 4 : Incertitudes de positions en fonction du type de matrice [16].

Un premier algorithme a été mis en œuvre pour corriger ces effets de position. Il repose sur l'utilisation d'une méthode de moindres carrés, et nécessite l'apprentissage sur une matrice de référence. Cet algorithme a été testé sur un grand nombre de cas (une ou plusieurs sources ponctuelles à différentes positions).

Le tableau 5 présente les résultats obtenus pour le cas le plus pénalisant des matrices PVC. L'erreur de position corrigée est alors limitée à un maximum de + 30 % dès que la masse mesurée est atteinte de quantités significatives (supérieure à 3 LD).

Matrice	Δ_{\min} (%)	Δ_{\max} (%)	σ_{position} (%)
PVC 0,180 g.cm ⁻³	- 46	+ 14	25
PVC 0,253 g.cm ⁻³	- 18	+ 30	16

Tableau 5 : Incertitudes de position corrigées pour des matrices PVC [16].

Les incertitudes de position sont limitées pour toute la gamme de matrices étudiées. Il est à noter que ces incertitudes sont très inférieures à celles imputables aux effets de matrice.

4.3.2 Incertitudes dues à la confusion U/Pu

L'uranium 235 possède une activité spécifique de 80 Bq/mg très inférieure à celle du plutonium des sources étalons utilisées (11 Mbq/mg [16]). La confusion entre ces deux actinides peut donc entraîner une surestimation importante de l'activité alpha finalement déclarée.

Le moyen de discriminer ces deux composantes n'a pas encore été complètement étudié sur PROMETHEE 6. Cependant, une voie possible de réduction de ces incertitudes consiste à utiliser l'analyse des multiplicités. Cette technique repose sur le fait qu'une fission produit jusqu'à 9 neutrons (distribution de Maxwell), et que la probabilité d'émission de chaque multiplet est caractéristique du noyau émetteur. Le comptage d'une multiplicité d'ordre n est proportionnel au rendement de détection à la puissance n . Compte tenu du rendement de détection élevé de PROMETHEE 6 (25,7 % cellule vide [16]), les quatre premiers ordres de multiplicité seraient exploitables. Sa mise en œuvre ne nécessiterait pas de temps supplémentaire puisque tous les signaux neutroniques nécessaires sont acquis durant la mesure habituelle par I.N.A.

5 Conclusion

La caractérisation d'objets radioactifs a nécessité la mise au point de méthodes de mesure adaptées à chaque problème spécifique : par exemple la nature et la période des radioéléments recherchés, la nature et l'énergie des rayonnements émis, le niveau d'activité et le volume des objets.

Dans le cas de la mesure de traces de matière fissile présente dans des colis de déchets radioactifs, plusieurs sources d'incertitudes viennent entacher la mesure. Parmi les plus pénalisantes à l'heure actuelle se trouvent les effets de matrice. Dans le cas particulier des colis de déchets faiblement contaminés, la méthode non-destructive d'Interrogation Neutronique Active utilisée dans la cellule de mesure PROMETHEE 6 présente d'importantes limitations de ses performances liées directement à ces effets.

Les études présentées dans la littérature font état de méthodes de correction des effets de matrice reposant sur l'utilisation de détecteurs de neutrons, ou sur la combinaison de différents résultats de mesure. Elles utilisent une information globale concernant le pouvoir de modération et/ou d'absorption de la matrice. Ces méthodes ne cherchent pas à en appréhender la composition.

Afin d'améliorer l'interprétation des signaux neutroniques issus de la mesure dans PROMETHEE 6, il est proposé d'apporter une information sur la composition réelle de la matrice d'un colis de déchets, dans le cas d'un remplissage homogène. Le but est de caractériser certains éléments d'intérêt particulièrement perturbants pour la mesure par I.N.A., comme l'hydrogène et le chlore. Cela permettrait de réduire l'incertitude liée aux effets de matrice en améliorant la connaissance du contenu du colis interrogé. Dans cette optique, la spectrométrie gamma des rayonnements de capture présente de nombreuses potentialités pouvant permettre de détecter et de quantifier certains éléments (chapitre 2).

TABLE DES FIGURES ET TABLEAUX :

<u>FIGURE 1 : ORIGINES DES INCERTITUDES DE MESURE EN I.N.A.</u>	14
<u>TABLEAU 1 : COEFFICIENTS DE CARACTÉRISATION DE MATRICES OBTENUS EN [13].</u>	18
<u>FIGURE 2 : DISPOSITIF DE MESURE PROMETHEE 6.</u>	21
<u>FIGURE 3 : ALLURE DU SIGNAL NEUTRON DANS PROMETHEE 6, EN L'ABSENCE DE</u>	22
<u>CONTAMINANT (2) ET EN PRÉSENCE DE CONTAMINANT (1).</u>	22
<u>TABLEAU 2 : ILLUSTRATION DE LA VARIATION DU COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE I.N.A. EN</u> <u>FONCTION DE LA NATURE ET DE LA DENSITÉ DE LA MATRICE [15].</u>	23
<u>TABLEAU 3 : VARIATION DE LA MASSE ET DE L'ACTIVITÉ À LA LIMITE DE DÉTECTION EN</u> <u>FONCTION DU TYPE DE MATRICE [15].</u>	24
<u>TABLEAU 4 : INCERTITUDES DE POSITIONS EN FONCTION DU TYPE DE MATRICE [16].</u>	25
<u>TABLEAU 5 : INCERTITUDES DE POSITION CORRIGÉES POUR DES MATRICES PVC [16].</u>	25

Chapitre 2

Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : principe et méthode

L'objectif de ce chapitre est de présenter le principe de la méthode de correction des effets de matrice envisagée. Pour commencer, la spectrométrie des rayonnements gamma de capture appliquée à la correction des effets de matrice est exposée. Les différentes réactions neutroniques sources de rayonnements gamma et leur potentialités sont ensuite présentées. Une méthode adaptée aux contraintes de la spectrométrie gamma active est alors décrite. Pour finir, le principe général de la méthode de correction envisagée, reposant sur l'utilisation des signaux gamma utiles mesurés, est exposé.

L'irradiation d'un échantillon par un flux de neutrons entraîne des réactions nucléaires donnant lieu à l'émission de rayonnements caractéristiques de l'isotope émetteur. Une analyse qualitative des rayonnements émis permet donc d'identifier les éléments activés. Une analyse quantitative du spectre mesuré peut permettre de déterminer de façon précise la masse de l'élément activé.

Les neutrons thermiques employés pour la mesure par I.N.A. peuvent également produire de nombreuses réactions donnant naissance à des rayonnements gamma. Parmi les réactions possibles, la réaction de capture radiative (n, γ), favorisée pour les neutrons thermiques, permet d'effectuer cette caractérisation.

Les colis de déchets concernés par l'I.N.A. dans la cellule de mesure PROMETHEE 6 sont des colis de déchets technologiques potentiellement incinérables. Ils sont constitués dans environ 80 % des cas de plastique (nappes vinyles, gants, surbottes par exemple) et de cellulose (papier, chiffons). La détection des signaux gamma provenant des captures sur l'hydrogène et le chlore pourrait permettre d'apporter une information sur la composition de la matrice.

La méthode de correction envisagée dans cette thèse repose sur la spectrométrie des rayonnements gamma de capture émis par les constituants de la matrice pendant l'irradiation neutronique du colis de déchets. Le but est de déterminer sa teneur relative en cellulose et PVC afin de lui affecter le coefficient d'étalonnage I.N.A. le plus représentatif possible de sa composition réelle. Ce choix repose sur la constitution d'abaques permettant d'associer le signal gamma mesuré à chaque composition de matrice.

1 Caractérisation d'éléments simples par spectrométrie gamma sous irradiation neutronique

1.1 Les réactions neutroniques sources de rayonnements gamma

Lors de l'absorption d'un neutron par un noyau cible, il se forme un noyau composé, créé dans un état fortement excité. Cet état instable, d'une durée de vie de l'ordre de 10^{-14} s, peut se désexciter selon plusieurs voies, en émettant (cf. figure 1) :

- des particules massiques associées ou non à des rayonnements gamma :
 - o un neutron : on a alors une réaction de diffusion ;
 - o plusieurs neutrons : réactions ($n, 2n$), ($n, 3n$), (n, xn) ;
 - o un noyau léger : (n, p), (n, d), (n, t), ($n, {}^3\text{He}$), ($n, {}^4\text{He}$) ;
 - o des fragments de fission associés à des neutrons et des gamma : réaction (n, f) ;
- des rayonnements gamma : réaction (n, γ), gamma de désexcitation.

Les notations de la figure 1 sont les suivantes :

X : noyau cible

Z : nombre de protons

A : nombre de nucléons

n : neutron

γ : gamma de capture

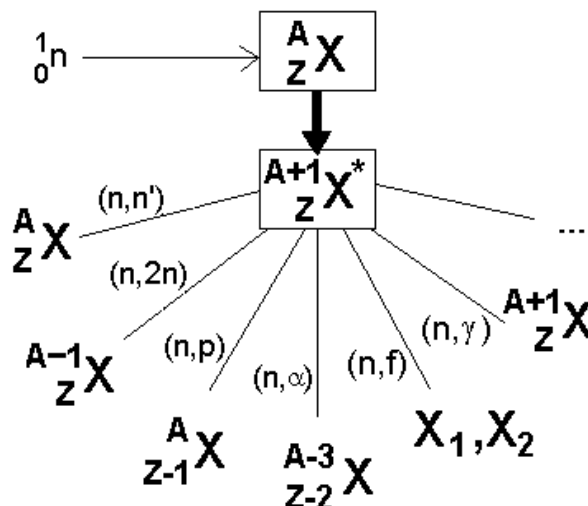


Figure 1 : Schéma de voies de sortie possibles des réactions neutroniques.

1.1.1 Les réactions de diffusion neutronique ($n, n'\gamma$)

La diffusion peut être élastique ou inélastique. Les réactions de diffusion sont à l'origine des capacités de modération de certains matériaux. Elles modifient l'énergie et la direction du neutron incident, mais ne le font pas disparaître comme c'est le cas pour les réactions d'absorption.

Lors d'une diffusion élastique, l'énergie cinétique totale du système neutron-noyau est conservée. Une partie de l'énergie cinétique du neutron est emportée sous forme d'énergie de recul par le noyau cible. Le neutron perd donc de l'énergie : c'est cet effet de modération qui est recherché dans le graphite de la cellule PROMETHEE 6 afin de thermaliser les neutrons interrogateurs émis à 14 MeV sans les absorber.

Lors d'une diffusion inélastique, une partie de l'énergie cinétique du neutron incident est conservée par le noyau cible sous forme d'énergie d'excitation. Celui-ci se désexcite ensuite par émission de rayonnements gamma. La réaction est notée ($n, n'\gamma$). Les réactions de diffusions inélastiques sont des réactions à seuil. Elles nécessitent des neutrons d'énergie supérieure à quelques MeV.

1.1.2 Les réactions d'activation/désactivation

De nombreuses voies de sortie des réactions neutroniques donnent lieu à l'émission de particules chargées ou non, accompagnée ou non de rayonnements gamma. Toutes ces réactions peuvent conduire à des noyaux dans un état excité, qui peuvent relaxer leur énergie sous forme de rayonnements gamma.

D'autre part, les noyaux produits par ces réactions peuvent eux-mêmes être radioactifs, et donner des noyaux fils émetteurs gamma, par exemple par décroissance β . Ces décroissances radioactives sont gouvernées par une loi exponentielle régie par une période de décroissance $T_{1/2}$ propre à chaque isotope formé.

Les rayonnements gamma de désexcitation sont caractéristiques d'une transition dans un nucléide bien défini et peuvent constituer un moyen de le détecter et de le quantifier. Ce nucléide peut toutefois être produit par des voies différentes à partir de noyaux différents. Néanmoins, les ambiguïtés qui en résultent peuvent souvent être levées.

1.1.3 La réaction de fission

L'absorption d'un neutron par un noyau fissile conduit à la formation d'un noyau composé. La fission d'un noyau produit généralement deux fragments de masse plus faible dans un état excité et s'accompagne de l'émission de neutrons et de gamma. Les fragments présentent une distribution du nombre de masse A centrée sur 100 et 140. Une fission produit également un dégagement d'énergie de l'ordre de 200 MeV.

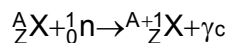
La réaction de fission (n, f) est favorisée dans le cas des noyaux fissiles pour les neutrons thermiques (typiquement 0,025 eV) qui apportent l'énergie nécessaire pour surmonter la barrière de potentiel par le biais de leur énergie de liaison. C'est le cas des noyaux ^{235}U , ^{239}Pu ou ^{241}Pu . La fission peut également être provoquée par un neutron rapide d'énergie de l'ordre du MeV et plus. Le neutron rapide apporte alors en plus de son énergie de liaison son énergie cinétique qui permet de franchir la barrière de potentiel. C'est le cas des noyaux tels que ^{238}U ou ^{240}Pu .

Moins de 10^{-13} s après, des neutrons et des gamma prompts sont émis. Deux cents millisecondes à 55 secondes après, certains produits de fission, appelés précurseurs, se dés excitent par radioactivité β^- et émettent des gamma et des neutrons retardés [1].

Le nombre de gamma prompts émis lors d'une fission varie de 7 à 10, et leur énergie totale moyenne est comprise entre 7 et 9 MeV. Ces rayonnements sont actuellement inexploitablement en mesure gamma active, en raison du bruit de fond élevé induit par les très nombreux noyaux fils se dés excitant dans un laps de temps très court. Le nombre de gamma retardés émis lors d'une fission varie de 6 à 8 en moyenne. Leur énergie moyenne est de l'ordre du MeV. Ces rayonnements retardés sont exploitables par la spectrométrie gamma.

1.1.4 La réaction de capture radiative

La réaction de capture neutronique radiative se produit selon le processus représenté sur la figure 2 :



Avec γ_c : gamma de capture émis

Le plus souvent, la probabilité de capture radiative d'un neutron est la plus élevée pour des neutrons thermiques. Les gamma de capture sont émis quasi-simultanément (10^{-14} à 10^{-16} s après l'absorption du neutron) et emportent le surplus d'énergie résultant du bilan énergétique de la réaction. En effet, on a :

$$Q = m({}^A_Z\text{X})c^2 + m({}^1_0\text{n})c^2 - m({}^{A+1}_Z\text{X})c^2$$

Q est presque toujours positif pour la capture neutronique et vaut l'énergie de liaison du neutron absorbé (entre 2 et 10 MeV) dans le noyau formé ${}^{A+1}_Z\text{X}$.

Toutes choses égales par ailleurs, l'aire nette A sous un pic d'énergie E_γ (cf. figure 3), contrairement au cas de l'activation neutronique, ne dépend pas d'une période radioactive mais de la durée de la mesure, réalisée pendant l'irradiation neutronique.

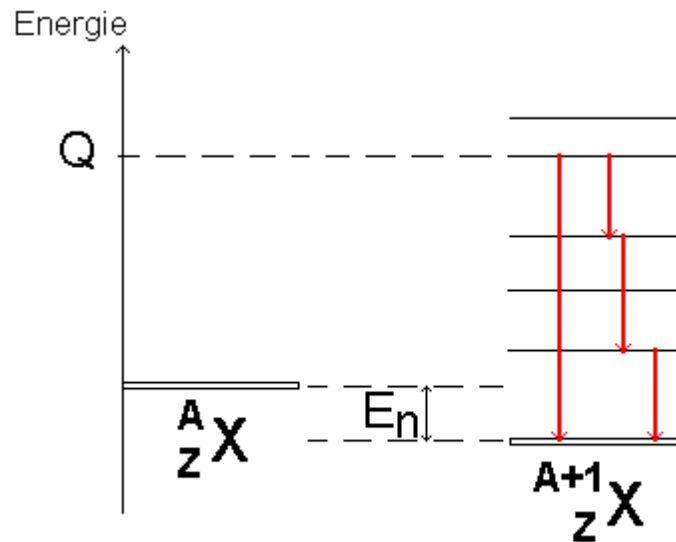


Figure 2 : Schéma de la réaction (n, γ) de capture radiative d'un neutron [17].

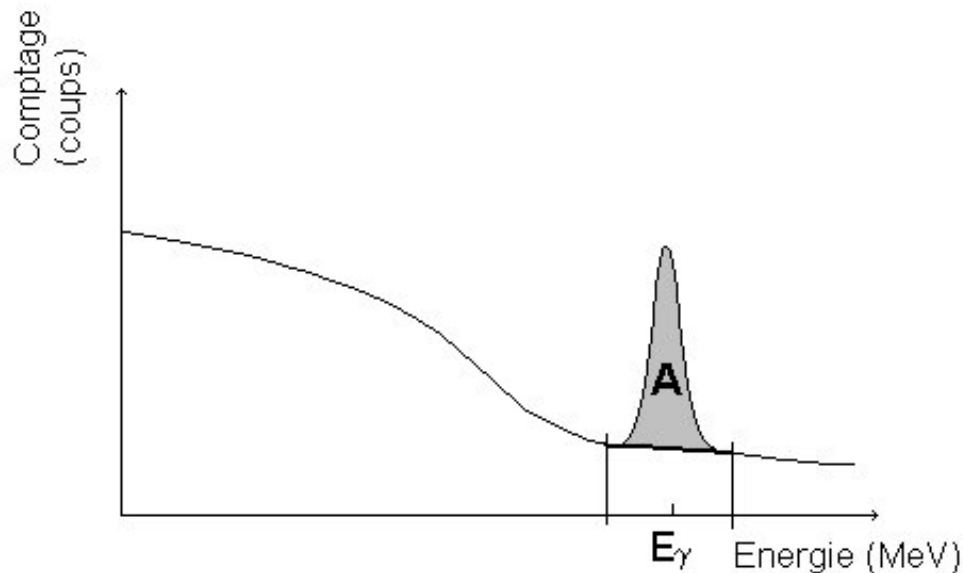


Figure 3 : Schéma du signal utile gamma A d'un pic d'énergie E_γ .

Le taux de captures $\tau_{(n,\gamma)}$ sur un élément est donné par l'équation (2).

$$\tau_{(n,\gamma)} = \frac{x \cdot m}{M_A} \cdot N_A \cdot \left(\int \sigma(E_n) \cdot \Phi(E_n) \cdot dE_n \right) \quad (\text{éq. 2})$$

Avec :

- x : teneur isotopique de l'isotope d'intérêt (%)
- m : masse de l'élément d'intérêt (g)
- M_A : masse atomique de l'élément mesuré (g/mol)
- N_A : nombre d'Avogadro ($6,02 \cdot 10^{23}$ at/mol)
- σ : section efficace de capture neutronique (cm^2)
- Φ : flux de neutrons incident ($\text{n} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$)
- E_n : énergie du neutron incident (keV)

La relation entre l'aire A sous un pic et la masse de matière ayant donné naissance à ce pic est donnée par l'équation (3).

$$A(E_\gamma) = \tau(n, \gamma) \cdot I(E_\gamma) \cdot \rho(E_\gamma) \cdot t \quad (\text{éq. 3})$$

Avec :

E_γ : énergie du gamma émis (keV)

$I(E_\gamma)$: intensité de la raie gamma d'énergie E_γ

$\rho(E_\gamma)$: rendement de détection à l'énergie E_γ

t : durée de l'irradiation-mesure (s)

Le signal mesuré dépend donc dans un premier temps des paramètres de capture neutronique de l'élément d'intérêt (section efficace de capture, spectre du flux neutronique interrogateur) et dans un second temps des paramètres liés à la détection du photon d'énergie E_γ émis (intensité d'émission et rendement de détection à cette énergie). D'autre part, il augmente avec la quantité de matière et la durée d'irradiation-mesure en absence d'effet d'autoprotection.

La déduction de la masse d'un élément d'un échantillon à partir d'un signal utile A nécessite la connaissance du flux de neutrons Φ et du rendement de détection ρ du dispositif de mesure. La mesure absolue du flux de neutrons est délicate et a conduit à réaliser des mesures relatives en comparant des raies de capture de différents éléments produites pendant la même irradiation (même flux de neutrons).

La détermination du rendement de détection peut être effectuée en utilisant des rayonnements gamma de capture présentant des raies sur une large gamme d'énergie (par exemple celles du chlore, très bien connues). Ceci peut permettre une comparaison à basse énergie avec des sources isotopiques. L'utilisation d'un code de transport des neutrons et des photons (de type Monte Carlo N-Particle) peut également permettre d'appréhender le rendement de détection à haute énergie [18].

Le tableau 1 présente des éléments susceptibles d'émettre des rayonnements de capture dans la cellule PROMETHEE 6 (H, B, C, Al, Fe, Cd, Pb...) ainsi que dans les matrices concernées par cette étude.

Les raies de capture de l'isotope 35 du chlore ont été bien étudiées [19-24] et leur spectre est maintenant bien connu. Coceva et al. [24] présentent des résultats de mesure avec des incertitudes inférieures à 3 ppm pour les raies d'énergie en-deçà de 2 MeV, et des incertitudes inférieures à 10 ppm pour celles d'énergies supérieures à 3 MeV. Les principales raies du chlore sont présentées dans le tableau 1. Ces données reprennent et complètent de précédents travaux [6, 7, 8] qui présentent des résultats plus complets, avec le détail de plus de 400 raies et intensités associées¹. Cependant, les raies les plus intenses, susceptibles d'être détectées facilement, sont listées dans le tableau 2. Les intensités associées à ces émissions ont fait l'objet ultérieurement d'études particulières de la part de Molnar et al. [22].

¹ L'existence de nombreux chlorures métalliques permet d'utiliser les raies du chlore comme référence de flux neutronique et d'obtenir ainsi de façon relative le signal issu des éléments métalliques. Cette approche a été employée dans l'étude du mercure sur le dispositif Moyen d'Etude par Capture du LDMN [25].

Elément	Section efficace de capture radiative (barns)	Energie (keV)	Intensité (%)
H	0,332	2223,25 ²	100,00
B	0,103	4443,00	75,96
		4710,20	34,18
		6759,30	39,50
		7005,10	47,85
C	0,00337	1261,74	29,53
		3683,93	32,10
		4945,33	67,64
Al	0,230	7723,85	27,43
Cl	33,2	517,10	24,30
		786,30	10,52
		788,40	16,32
		1164,90	27,20
		1951,10	19,39
		1959,40	12,56
		5715,20	5,31
		6110,80	20,58
		7414,00	10,52
Fe	2,55	352,18	11,70
		7631,13	28,51
		7645,45	24,13
Cd	2450	558,60	72,73
		651,30	13,90
Pb	0,170	7367,77	94,06

Tableau 1 : Données de spectrométrie gamma de rayonnements de capture [23,24].

Il est intéressant d'observer que le spectre des rayonnements gamma de capture du chlore s'étend jusqu'à près de 8 MeV avec des raies d'intensité supérieure à 10 %. Les raies les plus intenses sont celles à 1164,9 keV (27,20 %) et 6110,8 keV (20,58 %). L'intérêt du chlore en capture radiative réside dans sa section efficace de capture élevée (32,3 barns), ainsi que dans la présence de raies intenses inférieures à 1,5 MeV qui peuvent permettre de comparer l'étalonnage avec des sources classiques (⁶⁰Co et ¹³⁷Cs par exemple). En effet, les sources isotopiques disponibles usuellement pour étalonner les systèmes de détection dépassent rarement 1,5 MeV. La méthode employée pour étalonner la chaîne de spectrométrie à des énergies de plusieurs MeV repose sur des raies de capture identifiables dans la plupart des spectres de bruit de fond actif : raies du fer (doublet à 7631 et 7645 keV), de l'aluminium (7723 keV) ou du carbone (4945 keV). La raie gamma provenant de la diffusion inélastique (n, n') sur le carbone (4438 keV) est également utilisée dans ce but.

² La raie à 2223,3 keV de l'hydrogène n'est pas une raie de capture au sens défini dans ce paragraphe. En effet, elle ne résulte pas de la désexcitation d'un noyau excité, comme représenté sur la figure 2, mais de la relaxation de l'énergie de la fusion $^1\text{H} + n \rightarrow \text{D} + 2223,3 \text{ keV}$, le deutérium étant formé à l'état fondamental. Par abus de langage, cette raie à 2223,3 keV est dénommée dans ce mémoire sous le terme de « raie de capture de l'hydrogène ».

Energie (keV)	Intensité (%)
517,1	24,30
786,3	10,52
788,4	16,32
1131,2	1,91
1164,9	27,20
1601,1	3,48
1951,1	19,39
1959,4	12,56
2676,3	1,57
2863,8	5,77
2975,2	1,04
3061,9	3,52
4440,4	1,04
4979,7	3,61
5517,2	1,68
5715,2	5,31
5902,7	1,10
6110,8	20,58
6619,6	7,83
6627,8	4,69
6977,8	2,29
7414,0	10,52
7790,3	8,31
8578,6	2,73

Tableau 2 : Principales raies de capture de pleine énergie du chlore (réaction $^{35}\text{Cl} (n,\gamma) ^{36}\text{Cl}$) [24].

La figure 4 montre la variation relative des sections efficaces de capture du chlore naturel et de l'hydrogène :

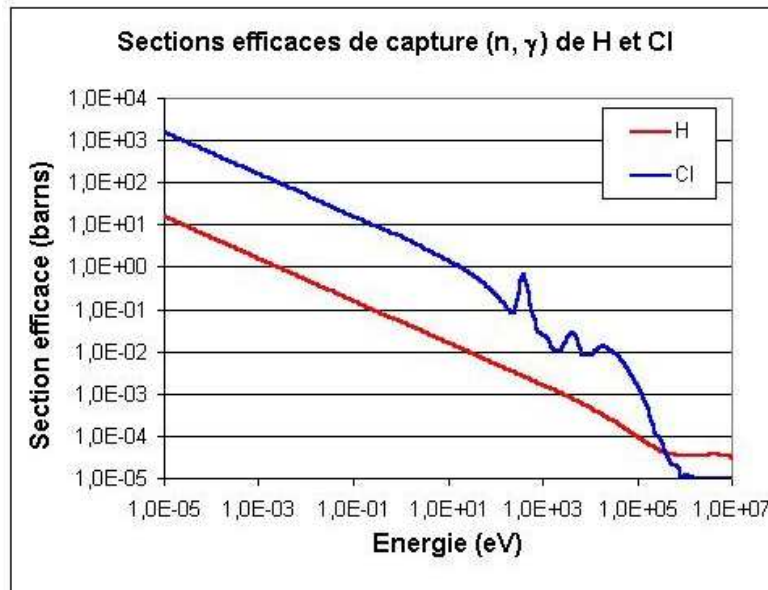


Figure 4 : Section efficace de capture du chlore et de l'hydrogène [7].

1.2 Potentialités des rayonnements gamma de capture dans le cadre de la correction des effets de matrice

Les réactions de capture radiative présentent un intérêt notable en vue de réaliser une correction des effets de matrice. En effet, les rayonnements gamma émis lors des différentes réactions constituent autant de signatures des éléments présents dans la matrice. En essayant de détecter ces rayonnements, il est possible d'obtenir une information sur sa composition. D'autre part, leur énergie élevée a pour conséquence une atténuation limitée de ces rayonnements par la matrice.

1.2.1 Les travaux de Close et al.

Cette approche a été tentée par D. A. Close et al. [26] dans une cellule (figure 5) de conception similaire à celle de la cellule PROMETHEE 6 sur des matrices contenant de l'hydrogène (CH_2), du bore, du chlore, du calcium, de l'aluminium, du fer et du cadmium (sous forme métallique). Les échantillons sont des fûts de 208 litres, et les spectres sont obtenus à l'aide d'une diode germanium, dopée au lithium, possédant un rendement de détection de 6 %. La source de neutrons est constituée d'un accélérateur d'électrons suivi d'une cible de freinage en tungstène qui produit un haut flux de photons par rayonnement de freinage, et d'une cible en béryllium qui convertit une partie de ce flux en neutrons par réaction (γ, n). L'utilisation d'un accélérateur a conduit à placer un blindage autour de la diode germanium pour la protéger des photons de rayonnement de freinage.

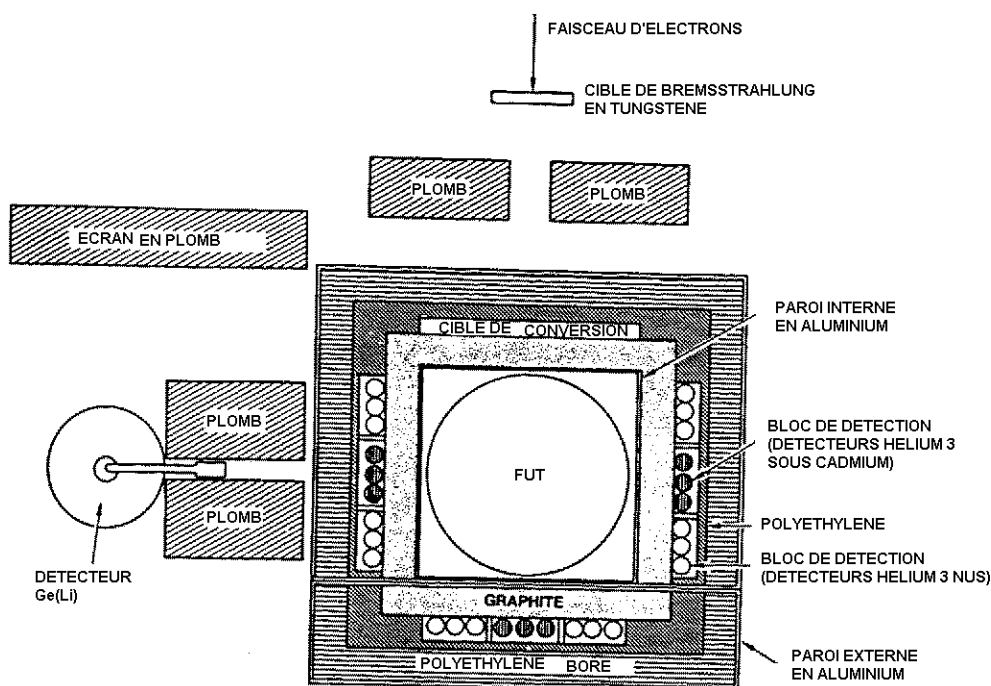


Figure 5 : Dispositif de mesure utilisé pour la détection des gamma de capture [26].

Les spectres publiés (figure 6) montrent la présence de rayonnements de capture provenant d'éléments d'intérêt contenus dans les matrices (chlore et aluminium) ainsi que des raies de bruit de fond (fer).

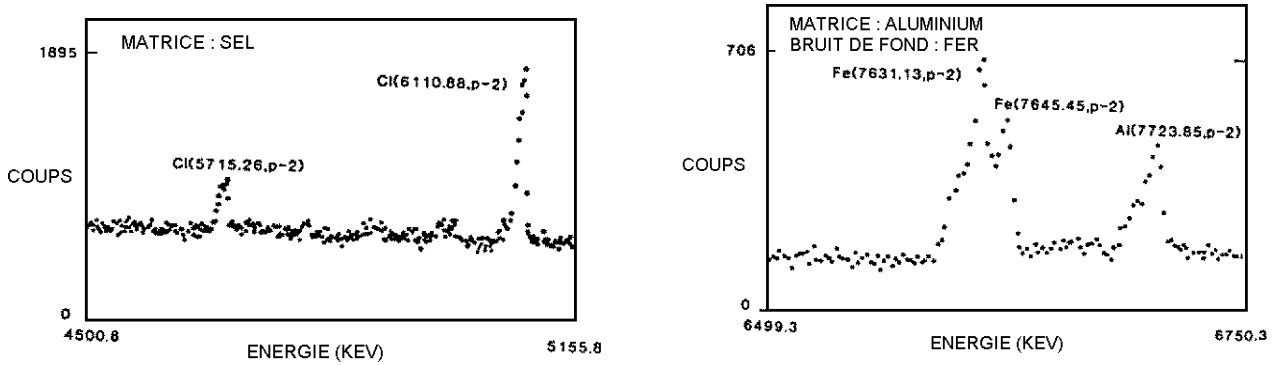


Figure 6 : Spectres de capture radiative obtenus sur des matrices contenant du chlore (5715 keV et 6110 keV) et de l'aluminium (7723 keV) [26].

Il peut donc être envisagé, comme il est fait dans cette thèse, de rechercher la présence de certains éléments contenus dans un fût de déchets radioactifs en utilisant les potentialités de la capture radiative. Le cas de l'hydrogène et du chlore, particulièrement gênants pour la mesure par I.N.A., semble une bonne voie de recherche dans le cadre de la caractérisation de matrices de colis de déchets radioactifs, en vue de la correction de leurs effets.

1.2.2 Etude du bruit de fond actif dans PROMETHEE 5

Les rayonnements gamma de capture contribuant au bruit de fond actif de la mesure neutronique dans la cellule PROMETHEE 5 ont été étudiés en 1996 [27].

L'hypothèse émise à l'époque supposait un couplage entre des réactions de capture (n, γ) et des réactions secondaires de type (γ, n) qui aurait induit des neutrons parasites. En effet, comme décrit au paragraphe 1.1, de nombreux matériaux constitutifs de la cellule PROMETHEE 5 (et de l'actuelle PROMETHEE 6) possèdent une forte propension à capturer des neutrons : le graphite, par la quantité importante mise en jeu (près de 4 tonnes dans les parois de la cellule), et le cadmium par sa section efficace élevée (2450 b). Ces matériaux émettent alors des gamma qui peuvent être d'énergie suffisante pour dépasser l'énergie seuil des réactions (γ, n) qui est de l'ordre de quelques MeV (8 MeV pour le plomb, 2,2 MeV pour le deutérium présent dans le générateur de neutrons, 4,9 MeV pour le ^{13}C du graphite). Une étude systématique de ces matériaux a mis en évidence la contribution de ce couplage (n, γ) / (γ, n) dans l'augmentation du bruit de fond actif.

Cette étude a démontré la présence de réactions (n, γ) dans les matériaux composant la cellule. Ces réactions participent au bruit de fond gamma et viendront perturber la recherche des gamma de capture utiles provenant des matrices.

1.2.3 Premiers essais de détection des gamma de capture dans PROMETHEE 5

Toujours en utilisant la cellule PROMETHEE 5, des travaux effectués dans le cadre d'un stage en 1992 ont permis d'investiguer la possibilité d'exploiter les rayonnements de capture pour caractériser une matrice [28]. La source de neutrons est un générateur émettant $1,3 \cdot 10^8$ n/s dans 4π , avec un cycle de 8 ms répété 112500 fois (15 minutes de mesure) et une largeur d'impulsion de 15 μs . Les matrices étudiées sont des fûts de 118 litres contenant du polyéthylène (CH_2) de densité 0,12, 0,20 et 0,26 g/cm^3 , ainsi que des fûts contenant différents types de vinyle. Les spectres gamma sont obtenus à l'aide d'une diode germanium de type

planar placée à l'entrée de la cellule, ce qui nécessite de maintenir en position ouverte la porte coulissante (figure 7). Deux détecteurs de neutrons sont placés à l'intérieur pour suivre l'évolution du flux thermique (détecteur « nu ») et du flux de neutrons rapides (détecteur sous cadmium). Un autre détecteur est placé à l'extérieur de la cellule pour suivre le flux interrogateur.

Les spectres obtenus mettent en évidence les raies de capture pouvant provenir de matrices étudiées : chlore (517, 786, 788, 1165, 1951 et 1959 keV) et hydrogène (2223 keV).

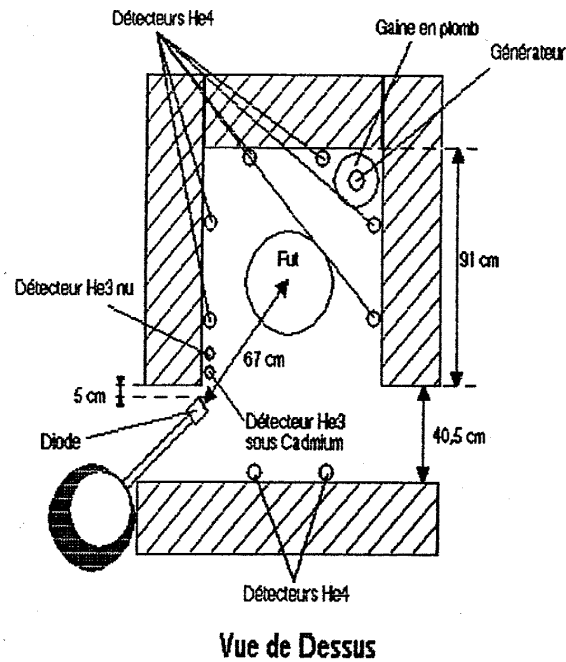


Figure 7 : Schéma du dispositif utilisé pour la détection des gamma de capture dans PROMETHEE 5 [28].

Quand la cellule est vide (figure 8), le bruit de fond actif montre la présence de raies de capture et de diffusion sur le germanium de la diode (139, 174, 596 et 898 keV) et sur le cadmium entourant les compteurs (558 et 651 keV), ainsi que des raies d'activation de l'aluminium (1779 keV) et de l'indium du joint d'étanchéité de la diode (1097 et 1293 keV). La raie à 2223 keV de l'hydrogène est également présente dans le spectre de bruit de fond.

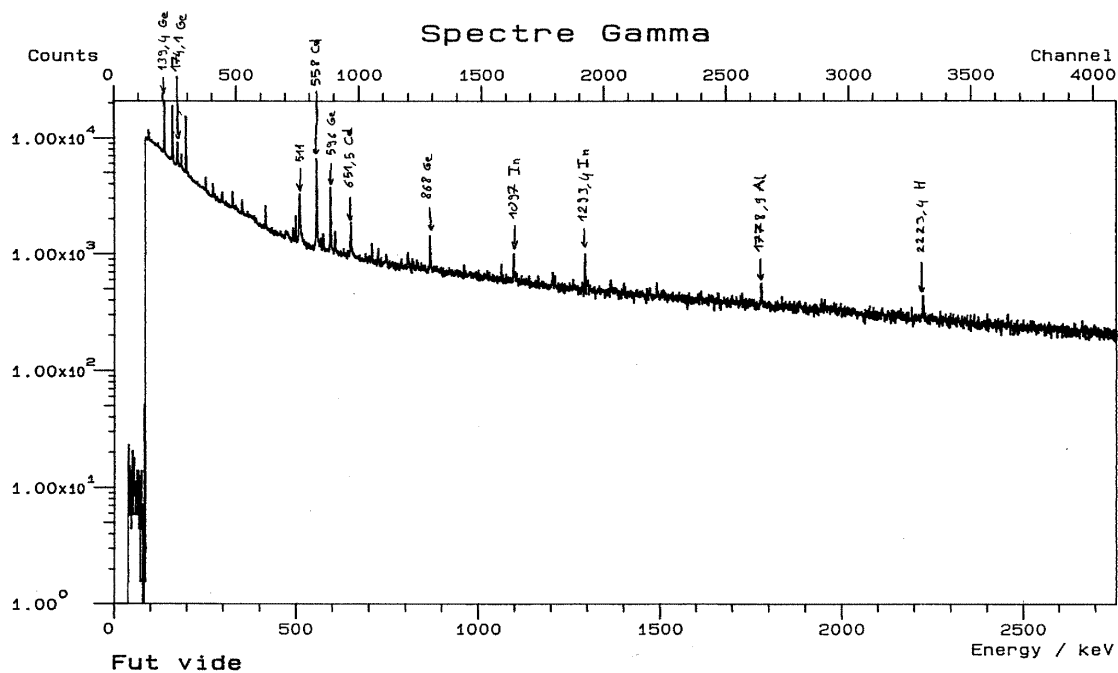


Figure 8 : Spectre des gamma émis par un fût vide de 118 litres sous irradiation neutronique [28].

En présence d'un fût de CH_2 (figure 9), la raie de l'hydrogène (2223 keV) est présente.

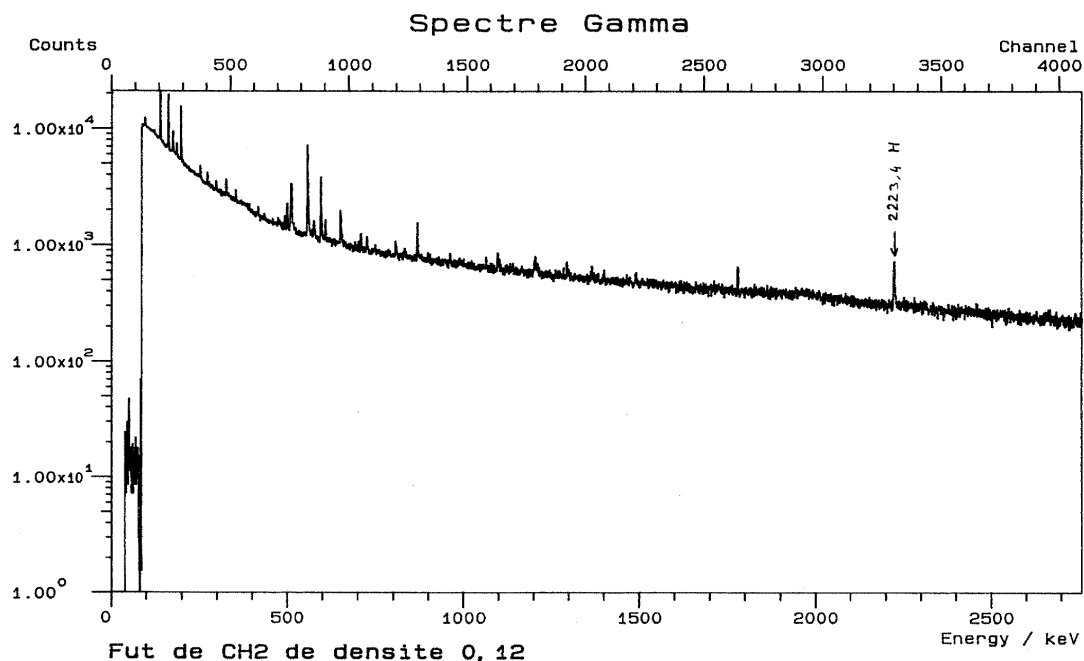


Figure 9 : Spectre des gamma émis par un fût de 118 litres de CH_2 de densité $0,12 \text{ g/cm}^3$ [28].

En présence d'un fût de vinyle blanc, des raies de capture du chlore sont repérables (figure 10).

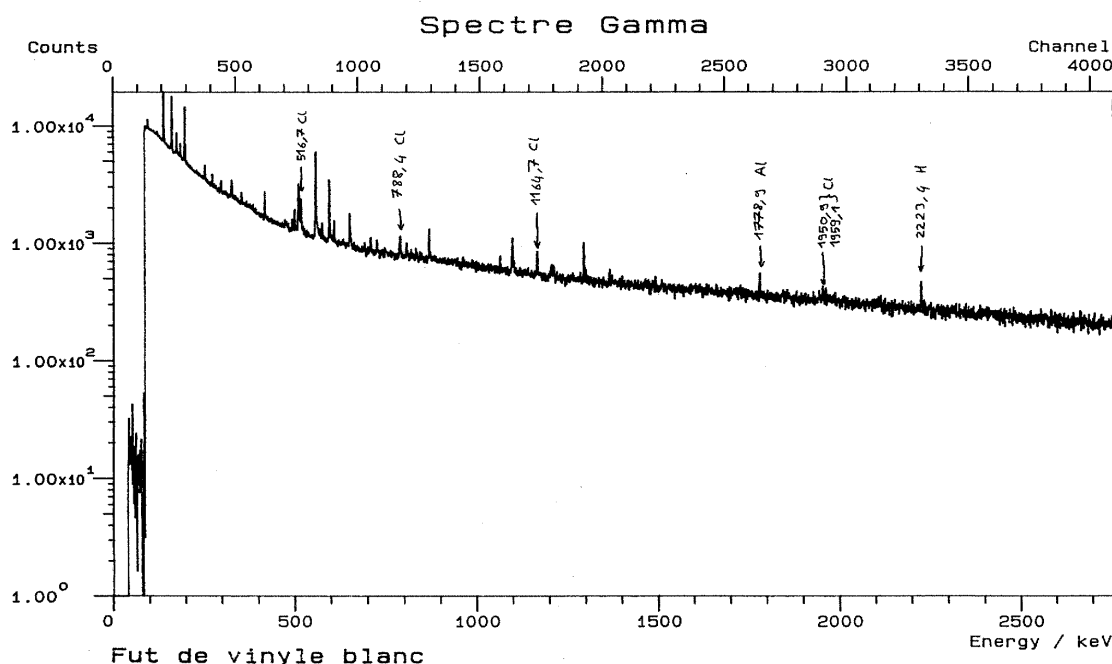


Figure 10 : Spectre des gamma émis par un fût de 118 litres de vinyle blanc [28].

Cette première étude a permis de montrer la faisabilité de la détection des rayonnements gamma de capture dans une cellule de type PROMETHEE 6. Cependant, la nécessité dans ce cas de maintenir la porte de la cellule de mesure en position ouverte pour permettre la visée de la matrice est très pénalisant pour la mesure par I.N.A., puisque cela crée une fuite de neutrons très importante. Cette solution ne saurait être retenue dans un cadre industriel.

1.2.4 Conclusion sur la validité de principe

Dans le cadre de la correction des effets de matrice, les travaux de Close et al. [26], bien que n'ayant pas fait l'objet de publications postérieures, sont prometteurs et valident le principe de la détection de rayonnements de capture provenant des matrices dans une cellule de conception similaire à PROMETHEE 6.

La géométrie de mesure utilisée lors des travaux réalisés auprès de PROMETHEE 5 (porte de la cellule ouverte) ne saurait être retenue pour une mesure par I.N.A. La perturbation engendrée sur le flux neutronique par l'ouverture de la porte est en effet rédhibitoire pour obtenir les caractéristiques de flux requises pour l'I.N.A. (durée du flux thermique et rendement de détection élevés).

Par ailleurs, ces travaux mettent également en évidence la présence de gamma de capture dus aux matériaux composant la cellule de mesure. Il est donc nécessaire de savoir distinguer leur signature et d'être capable de discerner le signal issu de la matrice du bruit de fond actif intrinsèque à la cellule PROMETHEE 6.

Cette contrainte forte nécessite une méthode expérimentale adaptée à la recherche des rayonnements gamma de capture sous irradiation neutronique. Le paragraphe 2 se propose de détailler les contraintes expérimentales pesant sur la détection des gamma de capture, et d'exposer les solutions adoptées dans le cadre de cette thèse.

2 Méthode expérimentale de spectrométrie des rayonnements gamma de capture

La spectrométrie des rayonnements gamma de capture se différencie de la spectrométrie gamma « classique » notamment par les énergies élevées mises en jeu, pour lesquelles le rendement de détection d'un détecteur germanium GeHP est faible. Des particularités sont également liées à l'utilisation d'un générateur de neutrons comme source d'irradiation.

Les neutrons rapides sont responsables d'une émission significative de rayonnements gamma par réactions de diffusion inélastique. Ces rayonnements constituent une source importante de bruit de fond parasite.

Les matériaux de la cellule et de l'environnement répondent à l'interrogation neutronique. Tous les matériaux possédant une section efficace de capture importante (Cd ou B par ex.), ou présents en grande quantité (C ou H par ex.) émettent des rayonnements gamma de capture qui constituent un bruit de fond pour la mesure des éléments d'intérêt de la matrice.

Le nombre de gamma produits dans l'ensemble des matériaux irradiés est très important. Il est donc nécessaire de disposer d'une chaîne de spectrométrie gamma capable de traiter les forts taux de comptage (plusieurs dizaines de milliers de coups stockés et mémorisés par seconde). Il est également nécessaire de s'assurer de la gestion correcte d'un temps mort variable temporellement.

Enfin, le germanium, qui constitue le matériau détecteur le plus répandu pour la spectrométrie gamma haute résolution, se détériore sous l'effet des neutrons rapides. Cela se traduit par une dégradation de la résolution énergétique du détecteur.

2.1 Utilisation d'un générateur de neutrons en mode continu

L'usage d'une source de neutrons émettant un flux continu permet d'établir un taux constant de réactions neutroniques dans l'échantillon irradié.

Dans ce cas, le flux de neutrons qui s'établit en régime stationnaire dans la cellule de mesure possède un spectre énergétique couvrant à tout instant une gamme s'étendant jusqu'à 14,1 MeV. Toutes les réactions présentées précédemment (§ 1.1) peuvent alors se produire simultanément, émettant les rayonnements gamma qui leur sont associés. Le spectre obtenu par spectrométrie gamma pendant cette irradiation en continu présente des raies signant à la fois les réactions à seuil produites par des neutrons rapides, les réactions d'activation diverses, ainsi que les réactions de capture radiative qui constituent le signal utile gamma pour notre application.

Les principales difficultés découlant de ces réactions d'origine variée sont le niveau élevé de bruit de fond généré par les nombreuses réactions parasites, ainsi que le niveau élevé du fond Compton.

D'autre part, le nombre d'événements utiles provenant des raies gamma de capture est relativement peu élevé par rapport au taux de comptage total à traiter par la chaîne de spectrométrie gamma.

Dans le but de discriminer les différentes composantes des réactions neutroniques, il est alors préférable d'utiliser le générateur de neutrons en mode impulsionnel. Cela permet de

discriminer temporellement les réactions induites par les neutrons rapides de celles favorisées pour des neutrons plus lents. Cependant, nous verrons par la suite qu'une émission impulsionnelle du générateur entraîne des difficultés de traitement des signaux liées à la gestion du temps mort.

2.1.1 Gestion des forts taux de comptage

Plusieurs phénomènes viennent détériorer le spectre obtenu quand le nombre d'évènements devient élevé. Tout d'abord, le phénomène d'empilement (*pile up*) se produit quand deux gamma non corrélés ou plus interagissent dans le détecteur de façon trop rapprochée dans le temps. Les deux signaux correspondants se superposent alors et donnent une valeur d'énergie erronée qui vient augmenter le bruit de fond et fait perdre la valeur « vraie » du signal. Afin de remédier à ce problème, des circuits de rejet d'empilement ont été conçus qui savent détecter l'essentiel des phénomènes d'empilement et les rejeter en inhibant le codeur. Cette inhibition interdit la mémorisation d'une « fausse » impulsion. Le prix à payer est une augmentation du temps mort de la chaîne.

En conséquence, le temps de mise en forme choisi pour les réglages de l'amplificateur doit être réduit, afin de diminuer le temps de traitement d'une impulsion. Mais plus ce temps est faible, plus il est difficile de collecter la totalité des charges produites par un gamma dans le détecteur. Cela se traduit par une dégradation de la résolution énergétique du spectromètre. Une solution consiste à utiliser un intégrateur à porte (*gate integrator*). La valeur du dépôt d'énergie n'est alors plus donnée par la hauteur du signal mis en forme, mais par son intégrale. Le signal intégré est ensuite transmis au Convertisseur Analogique Numérique (CAN).

Le CAN utilisé est de type « approximations successives ». Son temps de conversion est fixe, de l'ordre de quelques microsecondes alors qu'un CAN de type Wilkinson peut prendre plusieurs dizaines de microsecondes avec un temps variable pour chaque amplitude [29]. Avoir un temps de conversion fixe permet de connaître le temps mort dû à la conversion. Ce temps mort provient du fait que lorsque le CAN code une valeur, il ne traite pas les informations suivantes tant qu'il n'en a pas terminé avec celle qu'il est en train de coder. Les évènements se présentant à l'entrée du codeur pendant le temps de traitement de l'impulsion précédente sont donc ignorés et perdus pour l'acquisition.

Le temps mort total d'une chaîne d'acquisition (temps pendant lequel la chaîne n'est pas disponible pour le comptage) est la somme des temps de mise en forme, codage, transfert et mémorisation. La chaîne de spectrométrie utilisée avec des réglages optimisés pour les forts taux de comptage présente un temps mort évalué à 7,5 μ s [30].

2.1.2 Détérioration du détecteur gamma

Le choix du détecteur adapté à la spectrométrie des gamma de capture doit tenir compte de la présence du fort flux de neutrons, dont les conséquences sur les systèmes de détection ne sont pas anodines.

Ce choix se fonde sur les critères suivants : résolution, rendement de détection, taux de comptage atteint, facilité de mise en œuvre. Le passage en revue des différentes possibilités offertes fait l'objet d'une note interne CEA [31].

Les semi-conducteurs utilisés couramment en spectrométrie gamma sont le silicium, adapté aux basses énergies, et le tellure de cadmium (CdTe), dont le volume des cristaux est

actuellement de l'ordre du cm^3 , ce qui en limite le rendement de détection. Le germanium, disponible couramment en cylindre de volume allant jusqu'à 0,5 litre, est donc le meilleur candidat parmi les semi-conducteurs classiquement utilisés en détection haute résolution de rayonnements gamma d'énergie allant jusqu'à 10 MeV.

Les scintillateurs sont également largement utilisés pour la spectrométrie gamma, notamment l'iodure de sodium (NaI) et le germanate de bismuth (BGO). Ces détecteurs ont pour avantage d'être rapides, facile à mettre en oeuvre et permettent d'obtenir de très bons rendements de détection, car leur volume peut aller facilement jusqu'au litre. Cependant, leur résolution est bien moindre que celle atteinte par un détecteur germanium [29].

Le choix se porte sur un détecteur germanium, car il présente un très bon compromis résolution / rendement de détection, ainsi que la possibilité d'accepter un taux de comptage allant jusqu'à environ 80000 impulsions codées et mémorisées par seconde.

Le choix d'une diode de type N permet cependant d'assurer une plus grande robustesse aux neutrons qu'avec un type P. Les valeurs de fluence couramment retenues comme limite supérieure avant détérioration de ses performances sont de l'ordre de 10^9 n/cm^2 [32]. Au-delà de cette valeur, la diode nécessite une réparation par recuit du cristal, afin de remédier aux défauts cristallins produits par l'irradiation. Dans le cadre des expérimentations présentées dans ce mémoire, la valeur arbitraire choisie pour la durée de bon fonctionnement de la diode est de 1000 heures. Le détecteur employé pour les études présentées dans ce mémoire (chapitre 3 et 4) est un détecteur germanium de type N de 30% de rendement relatif. Son inconvénient est sa sensibilité aux neutrons rapides.

La diode étant placée dans nos applications à faible distance de la source de neutrons (quelques dizaines de centimètres), les flux de neutrons intégrés par la diode seront *a priori* élevés, et nécessiteront une étude préalable afin de ne pas détériorer le détecteur trop rapidement. La position de la diode ainsi que le niveau d'émission neutronique ont donc été établis en conséquence (cf. chapitre 3, §1). Dans un cadre industriel, ce type de contrainte est à garder à l'esprit afin de limiter la fréquence de renouvellement des systèmes de détection.

2.2 Discrimination des rayonnements issus des différents types de réaction

Comme indiqué précédemment, les réactions mettant en jeu des neutrons ne possèdent pas toutes les mêmes caractéristiques. Les réactions de diffusion sont favorisées pour des neutrons d'énergie élevée (de l'ordre de quelques MeV), alors que les réactions de fission ou de capture radiative sont plutôt favorisées pour des neutrons de faible énergie, typiquement de l'ordre de 0,025 eV, correspondant au domaine thermique.

Les neutrons de 14 MeV émis par le générateur sont ralentis par les matériaux l'environnant (modérateur tel que le carbone ou l'hydrogène par exemple). Les neutrons épithermiques ou thermiques favorisent d'autres réactions, dont les réactions de capture radiative.

Afin de diminuer le bruit de fond actif, il est nécessaire de pouvoir différencier les contributions provenant de ces deux types de réaction. Dans ce but, l'utilisation d'un générateur de neutrons en mode impulsif permet de séparer deux grandes contributions : les réactions produites par les neutrons rapides émis pendant l'impulsion, et les autres réactions qui sont favorisées entre les impulsions du générateur de neutrons, à des moments où le flux de neutrons n'est constitué que de neutrons thermalisés, ou en cours de

thermalisation. Pour cela, une méthode d'acquisition reposant sur l'emploi d'une porte temporelle peut être mise en œuvre.

2.3 Méthode utilisant une porte temporelle d'acquisition

2.3.1 Principe de la méthode

Différentes contributions peuvent donc être distinguées dans le spectre gamma mesuré au cours d'un cycle de tir du générateur utilisé en mode impulsionnel :

- pendant l'impulsion, les neutrons sont rapides (14 MeV), et les réactions de diffusion inélastique sont prépondérantes ;
- à la fin de l'impulsion, le flux rapide n'est plus entretenu, et au bout de quelques dizaines de microsecondes, les diffusions inélastiques deviennent minoritaires. Le flux se thermalisant, la part des rayonnements de capture devient prépondérante,
- une fois le flux thermique décru, au bout de quelques millisecondes, des rayonnements gamma provenant d'éléments activés par les neutrons et possédant une période courte peuvent alors être détectés.

Il est dans ce cas possible de discriminer les différentes contributions en utilisant le fait qu'elles sont favorisées à des instants différents du cycle d'irradiation.

Il s'agit donc de définir une zone d'intérêt temporelle à l'aide d'une porte d'acquisition, commençant suffisamment tard pour limiter la détection des gamma provenant des diffusions inélastiques, tout en maximisant le signal provenant des captures.

2.3.2 Mise en oeuvre

En mode impulsionnel, les paramètres temporels de l'émission du générateur de neutrons sont la période de répétition du tir T et la largeur de l'impulsion de neutrons τ . Chaque cycle de mesure se déroule pendant une période de tir du générateur de neutrons.

La porte d'acquisition s'ouvre pendant une durée Δt avec un temps de retard t_r sur la fin de l'impulsion du générateur de neutrons. On a alors la situation présentée sur la figure 11. En rouge est indiquée l'allure du flux thermique engendré par une impulsion du générateur de neutrons. La porte est choisie de façon à autoriser la mesure entre les impulsions, là où le flux thermique est prépondérant, tout en permettant de s'affranchir des rayonnements parasites provenant des réactions se produisant avec des neutrons rapides.

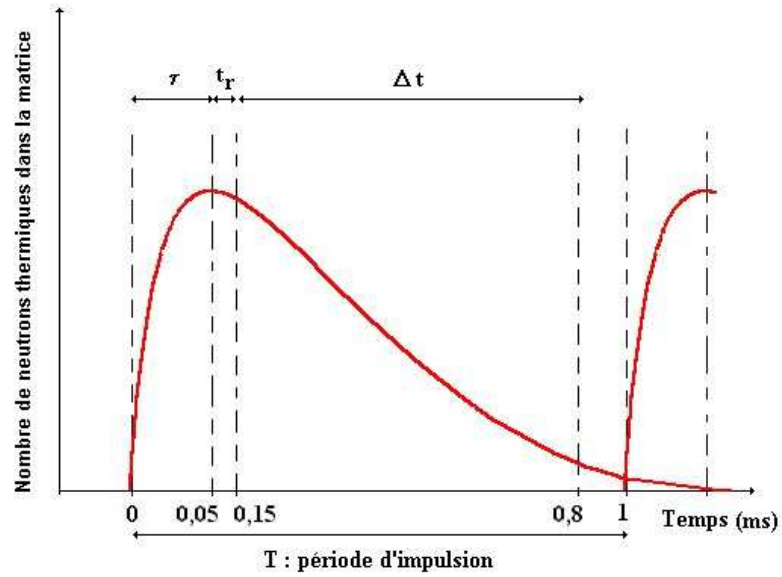


Figure 11 : Schéma de principe d'un cycle de mesure.

La figure 12 présente un exemple des signaux visualisés à l'oscilloscope : en noir, l'impulsion de neutrons du générateur, en vert la porte choisie. La porte d'acquisition est ouverte sur cette figure entre 1 ms et 7,8 ms (échelle horizontale : 1 ms par carreau).

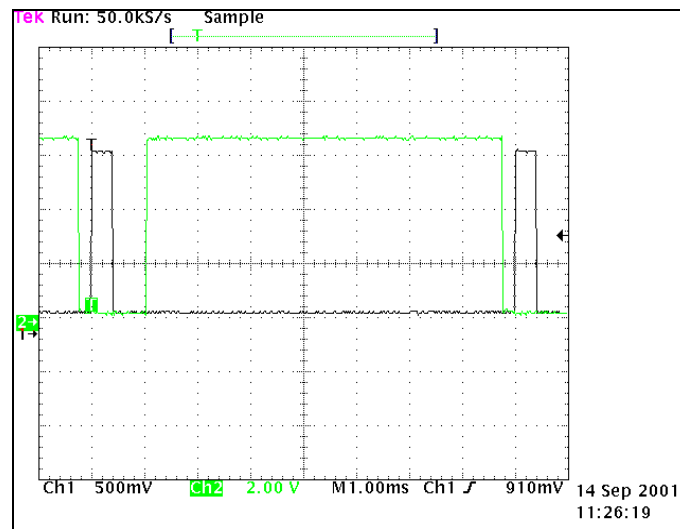


Figure 12 : Exemple de porte d'acquisition entre 1 ms et 7,8 ms pour une impulsion du générateur de largeur 400 μs répétée toutes les 8 ms.

Le schéma de câblage des différents éléments est décrit sur la figure 13. L'Unité de Contrôle du Générateur (U.C.G.) envoie un signal d'émission (trigger), qui est utilisé pour déclencher l'ouverture de la porte. Celle-ci est ouverte t_r μs après la fin d'une impulsion de neutrons et fermée à $t_r + \Delta t$. Pendant l'ouverture, elle est mise en coïncidence à l'entrée du codeur (A.D.C.) avec le signal provenant de l'amplificateur de la chaîne de spectrométrie. Le codage des données se fait alors pendant Δt μs.

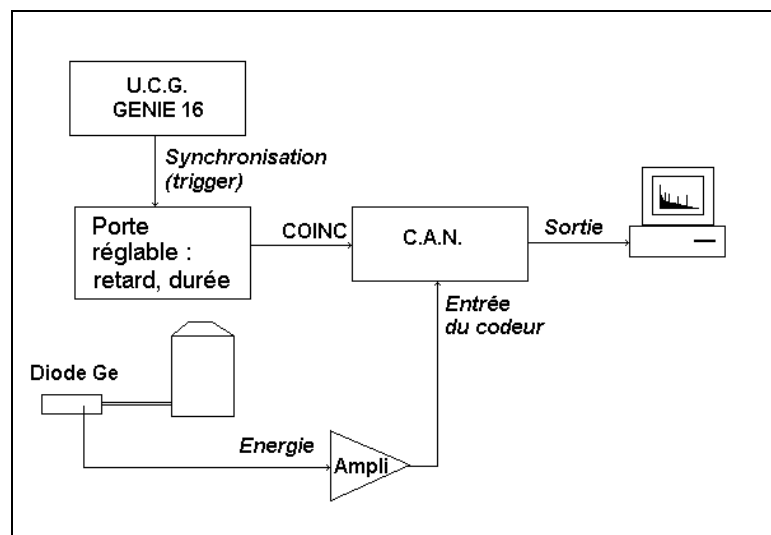


Figure 13 : Schéma de principe du câblage de la chaîne de spectrométrie gamma fonctionnant avec une porte temporelle d'acquisition.

La figure 14 présente la superposition de deux spectres obtenus auprès de PROMETHEE 6. La cellule de mesure est vide, le générateur de neutrons émet une impulsion de neutrons pendant 400 μ s répétée toutes les 8 ms. Le spectre qui comporte le fond le plus élevé (en rose) est acquis en continu. L'autre spectre (en bleu) est acquis dans une porte temporelle d'acquisition ouverte entre 0,5 et 7,8 ms.

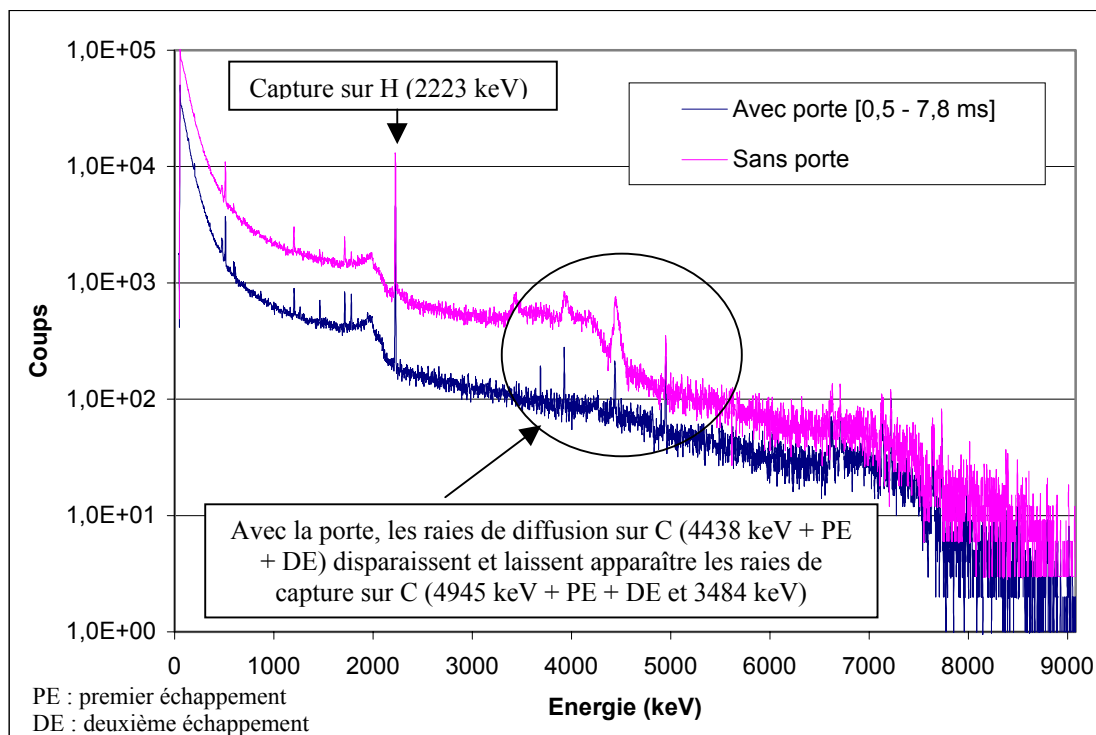


Figure 14 : Comparaison des spectres obtenus cellule vide avec une porte d'acquisition [0,5 – 7,8 ms] et sans porte d'acquisition.

La diminution du niveau du bruit de fond est ainsi mise en évidence : les très larges raies de diffusions inélastiques sur le carbone présentes dans le cas « sans porte » disparaissent quand la porte est utilisée. Cela entraîne une diminution du fond Compton d'un facteur 4 environ sur la gamme en énergie comprise entre la raie de l'hydrogène (2223 keV) et celle du pic de

diffusion sur le carbone (4438 keV). La diminution du fond Compton est moindre à plus haute énergie mais reste importante (facteur 2 environ).

Cependant, cette méthode présente un inconvénient majeur : la gestion du temps mort est rendue délicate en mode impulsif à cause de sa variation temporelle. Seul le temps mort moyen sur la durée d'acquisition est accessible lors de la mesure. Le temps mort instantané reste quant à lui actuellement inaccessible à l'expérimentateur. Dans le cas d'une source de neutrons en mode impulsif, le flux de neutrons résultant varie dans le temps. Les neutrons de 14 MeV sont émis lors de l'impulsion, et sont ensuite thermalisés lors de leur parcours dans la cellule de mesure. Le nombre de gamma produit est donc très élevé pendant la phase d'émission, puis décroît entre deux impulsions successives du générateur. Le temps mort, lié à la capacité de traitement de la chaîne d'acquisition, suit également le même comportement (cf. chapitre 4 § 2.1.2).

3 Méthode de correction des effets de matrice envisagée

3.1 Principe

Il repose sur la **détermination de la teneur de la matrice en matériaux d'intérêts** à l'aide de la **spectrométrie des rayonnements gamma de capture**, afin de **choisir un coefficient d'étalonnage I.N.A.** le plus réaliste possible.

En effet, pour chaque matrice connue, un coefficient d'étalonnage reliant le signal neutronique mesuré à la masse de contaminant réellement présente est déterminé. Ce coefficient est très variable d'une matrice à une autre. Dans le cas d'une matrice inconnue, ce coefficient est choisi comme étant celui du cas le plus pénalisant, et la valeur de masse déclarée peut alors être fortement majorée. Un moyen de diminuer l'imprécision concernant ce coefficient est de déterminer la teneur de la matrice en matériaux d'intérêt vis-à-vis de la capture neutronique. Ainsi, il sera possible de mieux interpréter le signal utile I.N.A. en choisissant un coefficient d'étalonnage plus réaliste du véritable contenu du fût.

L'objectif est de déterminer la teneur en cellulose et PVC des fûts et de chercher dans un abaque d'étalonnage la valeur du coefficient d'étalonnage le plus représentatif de cette composition. Ces abaques sont réalisés par une campagne d'étalonnage sur des fûts dont la composition et la densité sont connus. Cependant, le nombre de fût étalons étant forcément limité, il est indispensable de déterminer des relations entre la teneur en PVC et le coefficient d'étalonnage pour n'importe quelle composition. Cela peut se faire par interpolation à partir des points d'étalonnage expérimentaux. La fonction interpolée sur un nombre fini de points d'étalonnage serait valable sur un domaine de validité à déterminer. Il est également possible de chercher à modéliser la réponse obtenue par I.N.A. à l'aide d'un code de modélisation du transport des particules (MCNP) pour calculer le coefficient d'étalonnage à appliquer pour toute composition (cf. chapitre 4 §3.2).

La figure 15 présente la démarche retenue. En premier lieu, un étalonnage doit être réalisé sur des matrices connues afin d'apprendre le coefficient d'étalonnage $K_{\text{ét}}$ pour chaque matrice reliant la masse de contaminant M présente au signal neutron utile S_u :

$$S_u \text{ (c/s)} = K_{\text{ét}} \text{ ((c/s)/mg)} \cdot M \text{ (mg)}$$

Une mesure d'I.N.A. réalisée sur un fût inconnu conduit à un signal neutronique utile S_{mes} .

En parallèle à la mesure I.N.A., une mesure par spectrométrie des rayonnements gamma de capture mène à un signal gamma utile S_γ . Celui-ci donne accès à la teneur de la matrice en Cl et en H.

$$S_\gamma \Rightarrow (\%Cl, \%H)$$

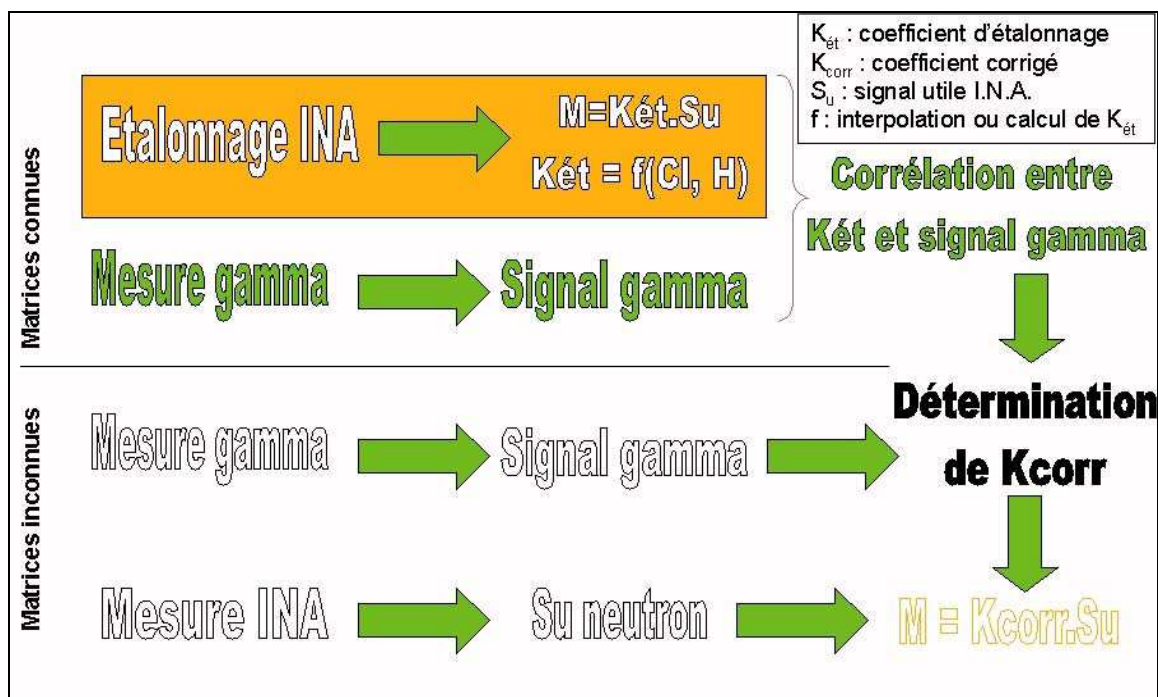


Figure 15 : Démarche pour le choix du coefficient d'étalonnage I.N.A. corrigé.

A partir de cette composition, le coefficient K_{corr} le plus représentatif possible de la matrice réelle mesurée est déterminé parmi les coefficients d'étalonnage $K_{ét}$.

$$(\%Cl, \%H) \Rightarrow K_{corr}$$

Ce qui permet de remonter à la masse déclarée corrigée M_{corr} :

$$S_{mes} (c/s) = K_{corr} ((c/s)/mg) \cdot M_{corr} (mg)$$

La méthode de correction propose donc de rechercher un coefficient d'étalonnage le plus représentatif possible de la composition réelle de la matrice. Ce coefficient possèdera sa propre incertitude de mesure, dont il faudra évaluer l'effet sur la masse de contaminant déclarée.

3.2 Méthode de correction

Dans ce paragraphe est explicitée la détermination du coefficient K_{corr} à partir des données expérimentales de spectrométrie gamma, obtenues par les méthodes décrites au § 2.

Les mesures de spectrométrie gamma donnent des signaux utiles hydrogène S_H et chlore S_{Cl} . Ces signaux utiles varient, dans une géométrie de mesure fixée (position de la diode germanium, paramètres du générateur de neutrons), en fonction du type de matrice mesuré (mélange de cellulose et de PVC) et de sa densité. L'acquisition de ces signaux sur un jeu de

matrices étalons de composition et de densité connues permet de tracer des abaques expérimentaux.

De façon plus précise, il s'agit de déterminer la teneur équivalente en PVC et en cellulose d'un fût de déchets technologiques de faible densité et de composition réelle mal connue. Pour ce faire, la première étape consiste à séparer les cas des matrices contenant du PVC de celles n'en contenant pas. Ceci nécessite de déterminer les limites de détection associée aux signaux utiles chlore et hydrogène.

Dans le cas où la matrice est déclarée sans PVC, le traitement est relativement simple. En l'absence de signal chlore S_{Cl} (inférieur à la limite de détection), le fût est déclaré ne contenir que de la cellulose (100% cellulose). Les abaques 100% cellulose, qui présentent la variation du signal hydrogène S_H (provenant de la cellulose) en fonction de la densité, permettent alors de choisir le coefficient d'étalonnage I.N.A. correspondant au niveau de signal hydrogène obtenu pour la densité du fût mesuré.

Dans le cas où le signal chlore, indicateur de la présence de PVC dans la matrice, est supérieur à la limite de détection, la matrice est déclarée contenir un mélange cellulose / PVC. Il s'agit alors de déterminer la teneur respective de la matrice en ces matériaux. Pour ce faire, on se réfère à des abaques représentant la variation du rapport du signal chlore au signal hydrogène en fonction des différentes teneurs et des différentes densités. Cette détermination suppose l'existence d'un point unique dans ces abaques correspondant à une composition cellulose / PVC unique. Il est donc important d'obtenir des variations monotones des rapports des différents signaux avec la densité des matrices, pour les différentes compositions étudiées. D'autre part, le chlore émettant de nombreuses raies de capture, il faudra choisir celle donnant le meilleur rapport S_{Cl}/S_H en termes de précision et de dynamique.

La définition d'une méthode expérimentale et le tracé des abaques permettant de déterminer le coefficient d'étalonnage corrigé fait l'objet du chapitre 4 de ce mémoire.

4 Conclusion

Au vu des travaux publiés et des propriétés des matériaux présents dans les matrices des colis de déchets technologiques, la spectrométrie des rayonnements gamma de capture semble prometteuse pour obtenir des informations sur la composition des matrices des déchets technologiques mesurés par I.N.A. dans PROMETHEE 6.

Cependant, l'usage d'un générateur de neutrons de type D-T produit des neutrons rapides de 14 MeV, qui engendrent un grand nombre de réactions venant parasiter les signaux provenant des captures radiatives. Cela entraîne certaines difficultés, telles que :

- la présence d'un fort bruit de fond gamma ;
- l'obligation de gérer de forts taux de comptage ;
- la nécessité de protéger, dans une certaine mesure, la diode germanium des neutrons rapides.

Il est donc nécessaire de mettre en œuvre des méthodes adaptées, permettant de prendre en compte ces contraintes, afin d'obtenir un signal utile gamma exploitable pour développer une méthode de correction des effets de matrice. Nous avons démontré expérimentalement que l'utilisation d'une porte temporelle pour discriminer les différentes contributions permet d'améliorer les conditions de mesure auprès de PROMETHEE 6.

La méthode de correction envisagée repose alors sur l'emploi des signaux gamma de capture ainsi détectés. La spectrométrie gamma donnerait ainsi l'information sur la teneur du fût en matériaux d'intérêt, et donc sur le coefficient d'étalonnage I.N.A. à appliquer pour interpréter au mieux le signal neutron en terme de masse fissile.

La faisabilité de l'implantation d'un tel dispositif de spectrométrie gamma auprès la cellule PROMETHEE 6 est exposée dans le chapitre 3.

TABLE DES FIGURES ET TABLEAUX

FIGURE 1 : SCHÉMA DE VOIES DE SORTIE POSSIBLES DES RÉACTIONS NEUTRONIQUES.	30
FIGURE 2 : SCHÉMA DE LA RÉACTION (N, γ) DE CAPTURE RADIATIVE D'UN NEUTRON [17].	32
FIGURE 3 : SCHÉMA DU SIGNAL UTILE GAMMA A D'UN PIC D'ÉNERGIE E_γ.	32
TABLEAU 1 : DONNÉES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA DE RAYONNEMENTS DE CAPTURE [23, 24].	34
TABLEAU 2 : PRINCIPALES RAIES DE CAPTURE DE PLEINE ÉNERGIE DU CHLORE (RÉACTION ^{35}Cl (N,γ) ^{36}Cl) [24].	35
FIGURE 4 : SECTION EFFICACE DE CAPTURE DU CHLORE ET DE L'HYDROGÈNE [7].	35
FIGURE 5 : DISPOSITIF DE MESURE UTILISÉ POUR LA DÉTECTION DES GAMMA DE CAPTURE [26].	36
FIGURE 6 : SPECTRES DE CAPTURE RADIATIVE OBTENUS SUR DES MATRICES CONTENANT DU CHLORE (5715 keV ET 6110 keV) ET DE L'ALUMINIUM (7723 keV) [26].	37
FIGURE 7 : SCHÉMA DU DISPOSITIF UTILISÉ POUR LA DÉTECTION DES GAMMA DE CAPTURE DANS PROMETHEE 5 [28].	38
FIGURE 8 : SPECTRE DES GAMMA ÉMIS PAR UN FÛT VIDE DE 118 LITRES SOUS IRRADIATION NEUTRONIQUE [28].	39
FIGURE 9 : SPECTRE DES GAMMA ÉMIS PAR UN FÛT DE 118 LITRES DE CH_2 DE DENSITÉ 0,12 g/cm³ [28].	39
FIGURE 10 : SPECTRE DES GAMMA ÉMIS PAR UN FÛT DE 118 LITRES DE VINYLE BLANC [28].	40
FIGURE 11 : SCHÉMA DE PRINCIPE D'UN CYCLE DE MESURE.	45
FIGURE 12 : EXEMPLE DE PORTE D'ACQUISITION ENTRE 1 MS ET 7,8 MS POUR UNE IMPULSION DU GÉNÉRATEUR DE LARGEUR 400 μs RÉPÉTÉE TOUTES LES 8 MS.	45
FIGURE 13 : SCHÉMA DE PRINCIPE DU CÂBLAGE DE LA CHAÎNE DE SPECTROMÉTRIE GAMMA FONCTIONNANT AVEC UNE PORTE TEMPORELLE D'ACQUISITION.	46
FIGURE 14 : COMPARAISON DES SPECTRES OBTENUS CELLULE VIDE AVEC UNE PORTE D'ACQUISITION [0,5 – 7,8 MS] ET SANS PORTE D'ACQUISITION.	46
FIGURE 15 : DÉMARCHE POUR LE CHOIX DU COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE I.N.A. CORRIGÉ.	48

Chapitre 3

Mise en évidence de l'inadéquation de PROMETHEE 6 et développement d'une nouvelle cellule dédiée

L'objectif de ce chapitre est de présenter les études de faisabilité menées auprès de la cellule PROMETHEE 6 et la nécessité de développer une cellule de mesure dédiée à la mesure des rayonnements gamma de capture provenant des constituants des matrices. La méthode de spectrométrie gamma utilisant une porte temporelle d'acquisition a été mise en œuvre. Les résultats de cette campagne de mesure sont exposés, démontrant l'inadéquation de la cellule PROMETHEE 6 pour la détection des rayonnements de capture provenant des matrices : le signal utile provenant du chlore est trop faible, le signal utile provenant de l'hydrogène est noyé dans le bruit de fond dû aux matériaux composant la cellule ainsi que son environnement. Afin de remédier à ces limitations, une nouvelle cellule de mesure adaptée aux rayonnements de capture, baptisée REGAIN (REcherche des Gamma d'Activation et Irradiation Neutronique) a été développée. Son dimensionnement a été réalisé à l'aide du code de calcul MCNP, et mené dans le souci d'obtenir des performances optimales en termes de signal utile gamma dans le cadre des contraintes de réalisation identifiées.

L'idée développée dans cette première étude est d'utiliser la cellule PROMETHEE 6 existante, avec les paramètres d'Interrogation Neutronique Active (I.N.A.) optimisés pour la mesure de traces de matière fissile (U et Pu) dans des colis de déchets [33]. La réaction de capture étant, comme on l'a vu, favorisée pour des neutrons thermiques, ceux produits pour l'I.N.A peuvent également provoquer des réactions de capture radiative. D'autre part, afin de ne pas altérer les performances actuelles de la cellule de mesure PROMETHEE 6, aucune modification d'ordre mécanique n'est réalisée.

Le premier objectif est de déterminer la faisabilité de la détection des rayonnements de capture provenant des matrices dans la cellule PROMETHEE 6 existante, qui n'a pas été conçue à l'origine pour ce but. Le second objectif est de tester la méthode d'acquisition séquentielle avec porte temporelle afin de définir son intérêt dans le cadre de la présente application.

Préalablement à cette étude, le code de calcul Monte Carlo N-Particle (MCNP) [14] a permis de réaliser une cartographie de l'espace externe à PROMETHEE 6 en terme de flux de neutrons rapides et de rayonnements gamma d'intérêt afin d'optimiser l'emplacement de la diode.

1 Choix de l'emplacement du détecteur gamma par calcul MCNP

1.1 Le code de calcul MCNP

1.1.1 La méthode Monte Carlo

Le principe général de cette méthode repose sur l'utilisation d'un grand nombre de tirages aléatoires successifs permettant d'estimer des paramètres d'intérêt par le biais de valeurs moyennes (espérances mathématiques) de variables aléatoires. Le précurseur de cette méthode fut probablement le comte de Buffon, qui dès 1777 publia dans son *Essai d'Arithmétique Morale* un moyen d'estimer la valeur de π en laissant tomber de manière répétée des aiguilles sur un parquet.

La méthode Monte Carlo doit son nom à Metropolis et Ulam, qui les premiers ont décrit l'utilisation de cette méthode dans le cadre de calculs liés au projet Manhattan de conception des premières bombes atomiques dans les années 1940 [34]. Cette méthode stochastique est utilisée dans tous les problèmes mettant en jeu des variables aléatoires, ou des phénomènes pouvant s'y rapporter. Elle trouve ses applications dans le domaine du calcul d'intégrales, de la résolution d'équations différentielles, ou dans les problèmes de physique statistiques (modèles de gaz, réseau de spins...)

A la différence des méthodes dites déterministes, qui reposent sur la résolution numérique d'équation sur un maillage de l'espace (espace géométrique ou espace des phases), la méthode Monte Carlo repose sur des estimateurs, et sur des conditions d'acceptation et de rejets d'évènements. Elle se révèle très utile dans le domaine de la physique nucléaire, en particulier dans le transport de particules.

1.1.2 Application au transport d'une particule : le code MCNP

Le code de calcul MCNP est développé par le Laboratoire National de Los Alamos (Los Alamos National Laboratory) [14]. Les versions du code utilisées pendant cette thèse sont les versions 4C et 4C2. Ce code permet d'effectuer le transport de particules (neutrons et/ou

photons et/ou électrons). Il autorise le suivi de l'histoire d'une particule depuis une source d'émission, jusqu'à sa disparition par fuite ou par absorption lors d'une réaction.

MCNP se propose de suivre chaque histoire de chaque particule source, afin de déterminer des grandeurs statistiques à partir du grand nombre d'évènements ainsi engendré. A chaque interaction d'une particule d'énergie donnée, le type de réaction considéré est tiré au hasard, avec une probabilité dépendant des sections efficaces des réactions possibles. MCNP permet de suivre toutes les particules secondaires créées lors du parcours de la particule source. De plus, le système de traitement des interactions autorise le transport des particules de façon non-physique, en permettant par exemple à des particules subissant une absorption de continuer leur vie, avec un poids plus faible. Cette approche propre au code MCNP améliore la vitesse de convergence en augmentant encore le nombre d'évènements produits pour une particule source. Bien entendu, MCNP peut également traiter les problèmes de façon exactement physique, en faisant totalement disparaître les particules subissant une telle interaction.

MCNP donne accès à des scores obtenus par les particules d'intérêt (« tally »). Les paramètres actuellement accessibles avec MCNP sont les suivants :

- nombre de particules traversant une surface (tally F1) ;
- fluence de particules à travers une surface (tally F2) ;
- libre parcours moyen dans une cellule (tally F4) ;
- fluence en un point ou sur un anneau (tally F5) ;
- dépôt d'énergie dans une cellule (tally F8).

D'autre part, des modificateurs permettent d'utiliser ces « tallies » pour obtenir d'autres paramètres, comme le nombre de réactions d'un certain type sur un matériau d'intérêt. Cela autorise par exemple le calcul des rendements de détection neutronique (en calculant le nombre de réactions (n,p) sur l'hélium des compteurs) ou du nombre de réactions (n, γ) sur le chlore dans la matrice.

L'utilisation du code MCNP requiert un fichier d'entrée décrivant :

- la géométrie en trois dimensions du dispositif expérimental ;
- la source de particules (nature, spectre en énergie, direction de tir, probabilités d'émission, étendue...) ;
- les matériaux employés (nature, choix des sections efficaces à employer) ;
- les « tallies » demandés.

Ce code de calcul est utilisé depuis longtemps dans le domaine de la physique nucléaire, et il permet de résoudre de nombreux problèmes, avec une grande confiance dans ses résultats. Sa qualification a été réalisée dans de très nombreuses configurations. Cependant, MCNP possède des limites, liées à la complexité des cas à traiter. Dans le cas de géométries complexes ou pour lesquelles les particules ont une faible probabilité de parvenir à la zone où est calculé le « tally », des difficultés de convergence apparaissent. Des solutions permettant de biaiser le calcul de façon à faire converger des calculs complexes et ainsi réduire la variance des résultats obtenus ont été implémentées par les développeurs du code, mais ne répondent pas à tous les cas de figure [35]. Notamment, les versions 4C et 4C2 de MCNP ne permettent pas de biaiser les résultats du « tally » F8 (dépôt d'énergie), ce qui n'est pas sans poser des problèmes quand le volume de détection est très faible devant le volume total de la géométrie modélisée. C'est le cas lors du calcul du dépôt d'énergie des rayonnements gamma dans le volume de détection de la diode germanium (de l'ordre de la centaine de cm³) auprès

des cellules de mesures PROMETHEE 6 et REGAIN, dont les dimensions sont supérieures au m^3 . Il est dans ce cas obligatoire d'avoir recours à des astuces de calcul reposant sur des hypothèses adéquates, notamment l'emploi de calculs en plusieurs étapes avec description d'une source secondaire [36].

1.2 Estimation des fluences de neutrons devant la cellule PROMETHEE 6

Comme on l'a vu au chapitre 2, le détecteur choisi pour la campagne de mesure est sensible aux neutrons et peut subir une détérioration de ses performances pour un flux de neutrons rapides intégré supérieur à $10^9 n/cm^2$ [32]. Un compromis, orientant le choix de l'emplacement du détecteur, doit donc être trouvé entre la durée de vie du détecteur (fixée à 1000 heures d'irradiation) et le flux de neutrons auquel il sera exposé.

Pour ce faire, une étude par calcul MCNP de la fluence de neutrons rapides autour de la cellule PROMETHEE 6 a été menée. Une cartographie sommaire en a été obtenue, mettant en évidence des zones plus ou moins sensibles. Il conviendra de placer le détecteur dans une zone présentant un compromis acceptable pour sa longévité.

Le dispositif expérimental PROMETHEE 6 a été modélisé à partir du fichier de référence établi au LDMN [37]. La seule modification apportée à ce fichier est l'ajout de parois en aluminium de 2 mm d'épaisseur à l'intérieur de la cavité de mesure. L'influence de l'aluminium sur les flux de neutrons est négligeable, mais sa capacité à produire des gamma de capture et d'activation (réaction $^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$) peut augmenter le bruit de fond actif gamma de la cellule.

Les calculs ont été menés pour des neutrons initiaux rapides ($E_n > 1$ MeV). Compte tenu des contraintes d'encombrement (canne de refroidissement de 85 cm de long, espace nécessaire : $135 \times 50 \times 60 cm^3$), la diode germanium choisie est placée en face avant de la cellule de mesure, contre la paroi externe de la porte de PROMETHEE 6, à 70 cm du sol environ. La géométrie de la casemate d'irradiation ne permet en effet pas de placer cette diode près d'une face latérale de la cellule.

L'espace devant la face avant de PROMETHEE 6 est découpé selon un maillage de 72 cellules, de $10 \times 20 \times 20 cm^3$ ($10 \times 10 \times 20 cm^3$ sur les côtés). Les valeurs de fluence trouvées, calculées par neutron source émis, vont de $3.10^{-9} n/cm^2$ sur les bords à $9.10^{-8} n/cm^2$ au centre. La figure 1 représente en couleur la carte des fluences sur la face avant de la cellule PROMETHEE 6. Le code des couleurs utilisées sur la figure 1 est indiqué dans le tableau 1.

Couleur	Fluence (n/cm ² / neutron source émis)
Bleu	$< 10^{-8}$
Vert	de 10^{-8} à $2,5 \cdot 10^{-8}$
Jaune	de $2,5 \cdot 10^{-8}$ à $5 \cdot 10^{-8}$
Rouge	de $5 \cdot 10^{-8}$ à $7,5 \cdot 10^{-8}$
Marron	de $7,5 \cdot 10^{-8}$ à 10^{-7}

Tableau 1 : Code des couleurs utilisées dans la figure 1.

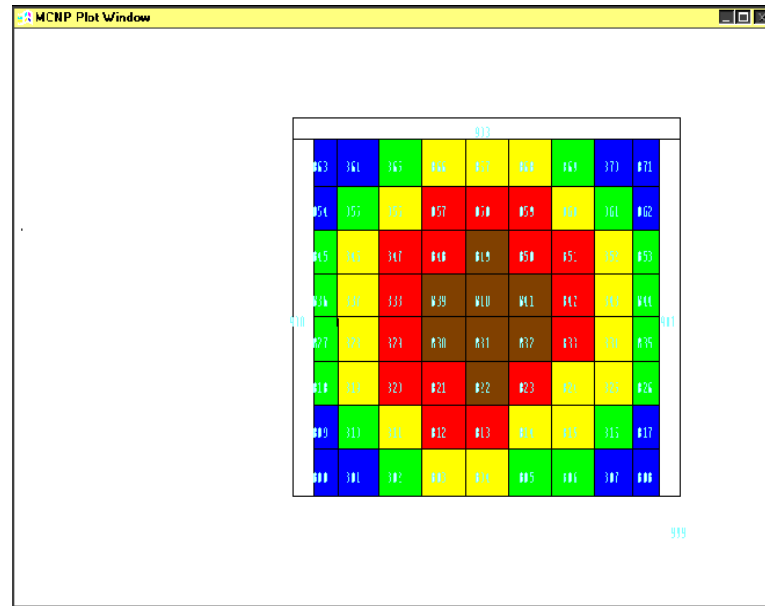


Figure 1 : Représentation des fluences de neutrons (n/cm²/neutron source) calculées par MCNP en face avant de la cellule PROMETHEE 6.

La répartition de la fluence de neutrons en face avant de la cellule présente une symétrie du centre vers les bords. Le détecteur subira donc le flux de neutrons le plus élevé, et donc les dommages les plus importants, au centre de la face avant. Pour une émission de 10^8 n/s, correspondant à l'émission moyenne du générateur de neutrons GIN 26 habituellement employé dans PROMETHEE 6, le flux maximal obtenu en milieu de la face avant conduit à atteindre la limite de 10^9 n/cm² intégrés en $1,11 \cdot 10^8$ s, soit 30864 h d'irradiation. Le détecteur germanium peut donc être placé en face avant de la cellule fermée sans subir de dommages à court terme.

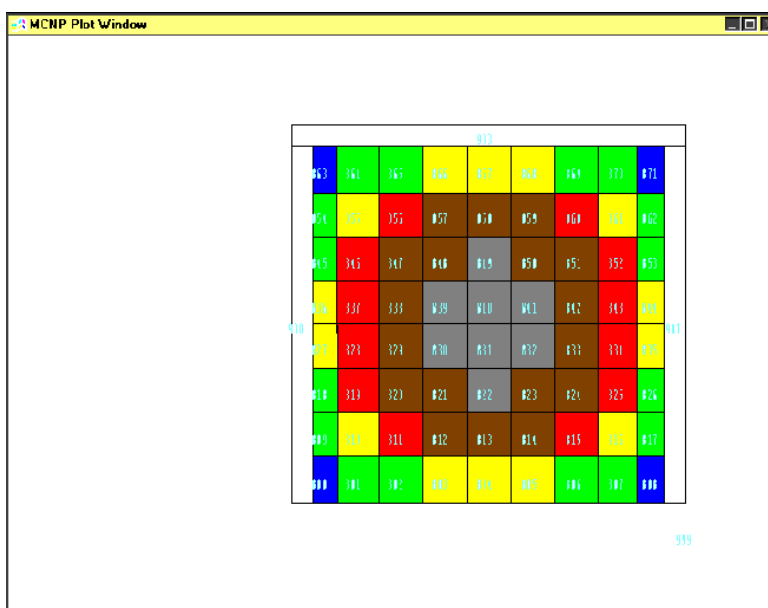
1.3 Estimation de la fluence gamma autour de la cellule PROMETHEE 6

Des calculs similaires à ceux réalisés précédemment pour la fluence de neutrons ont été effectués dans le cas de la fluence gamma, afin de maximiser le signal utile reçu par la diode.

Les valeurs trouvées, calculées pour un gamma source émis, vont de $1,6 \cdot 10^{-7}$ γ/cm² sur les bords à $1,91 \cdot 10^{-6}$ γ/cm² au centre de la face avant, devant la porte de la cellule. La figure 2 représente la carte de la fluence gamma au niveau de la face avant de la cellule PROMETHEE 6 (code des couleurs dans le tableau 2).

Couleur	Flux ($\gamma/\text{cm}^2/\gamma$ source émis)
Bleu	$< 2,5 \cdot 10^{-7}$
Vert	de $2,5 \cdot 10^{-7}$ à $5 \cdot 10^{-7}$
Jaune	de $5 \cdot 10^{-7}$ à $7,5 \cdot 10^{-7}$
Rouge	de $7,5 \cdot 10^{-7}$ à 10^{-6}
Marron	de 10^{-6} à $1,5 \cdot 10^{-6}$
Gris	$> 1,5 \cdot 10^{-6}$

Tableau 2 : Code des couleurs utilisés dans la figure 2.

Figure 2 : Représentation de la fluence gamma ($\gamma/\text{cm}^2/\gamma$ source) calculée par MCNP en face avant de la cellule PROMETHEE 6.

La fluence de gamma est maximale au centre de la face avant. La fluence de neutrons étant supportable par la diode (§1.2), c'est donc là que celle-ci sera placée pour l'étude expérimentale.

2 Etude expérimentale

L'idée de départ est de conserver les paramètres habituels de l'I.N.A. et d'étudier la faisabilité de leur transposition au cas de la mesure des rayonnements gamma de capture. Il serait en effet particulièrement intéressant du point de vue du procédé industriel de pouvoir coupler les deux mesures (I.N.A. et spectrométrie gamma des rayonnements de capture) pendant la même irradiation-mesure.

Les paramètres définis pour la mesure par I.N.A. dans PROMETHEE 6 avec un générateur de neutrons de type GIN 26 habituellement utilisé sont les suivants [33]:

- période de tir : 8 ms (fréquence de 125 Hz) ;
- durée d'impulsion : 15 μs (taux de travail de 0,2%¹) ;
- émission moyenne : 10^8 n/s.

¹ Le taux de travail est défini comme le rapport de la durée de l'impulsion retranchée du retard à l'amorçage à la période de répétition du tir. Le retard à l'amorçage est le temps qui s'écoule entre le signal d'excitation et l'amorçage de la source d'ions du générateur de neutrons.

Cependant, le générateur habituellement utilisé n'étant pas disponible lors de la campagne de mesures, un générateur de neutrons portable de type GENIE 16 est employé. Le taux de travail minimum permis par ce générateur étant conseillé à 5%, la largeur d'impulsion a été modifiée. Afin de se rapprocher le plus possible des conditions habituelles de l'I.N.A., les paramètres finalement retenus sont les suivants :

- période de tir : 8 ms (fréquence de 125 Hz) ;
- durée d'impulsion : 400 μ s (taux de travail de 5%) ;
- émission moyenne : 10^8 n/s (THT de 90 kV et courant cible de 40 μ A).

La chaîne de spectrométrie gamma utilisée comporte :

- une diode germanium de type N, 30% de rendement relatif, refroidie par azote liquide, avec un pré-amplificateur à remise à zéro transistorisée ;
- un câble de 30 mètres, permettant de déporter l'électronique associée, placée dans un tiroir NIM, hors de la cellule d'irradiation,
- une alimentation haute-tension modèle 3106D de Canberra,
- un amplificateur modèle 2024 de Canberra,
- un codeur analogique-numérique de type « à poids » modèle 8715 de Canberra,
- un PC équipé du logiciel MCA et d'une carte d'acquisition Accuspec,
- un oscilloscope numérique permettant de visualiser les signaux à différents stades de la chaîne électronique,
- un générateur de fonctions Philips modèle PM 5086 B, permettant la création de signaux rectangulaires de largeur variable, avec possibilité de retard par rapport à un signal de déclenchement (trigger).

La méthode de mesure utilisant une porte temporelle d'acquisition présentée au chapitre 2 est mise en œuvre dans cette étude expérimentale. La diode est placée devant la porte de la cellule, comme présenté sur la figure 3.

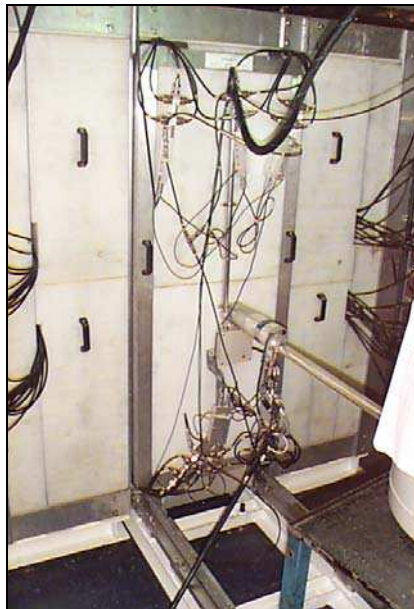


Figure 3 : Position de la diode germanium devant la porte de la cellule PROMETHEE 6.

2.1 Etude de la variation du taux de comptage en fonction du temps

Comme on l'a vu au chapitre 2 (§2.3.2), l'utilisation d'un générateur de neutrons en mode impulsionnel engendre un flux de neutrons thermiques variable avec le temps. Cela a pour corollaire une variation temporelle du nombre de gamma produits, et donc du taux de comptage de la chaîne de spectrométrie.

Pour appréhender la variation du taux de comptage dans le temps, des mesures ont été réalisées en déplaçant une porte de largeur 1 ms entre 0,4 et 7,4 ms après le début d'une impulsion. Par ailleurs et pour comparaison, le signal est également mesuré sur la quasi-totalité du temps disponible entre les impulsions [0,5 - 7,8 ms]. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3. L'indicateur retenu pour cette étude est le signal provenant de l'hydrogène.

Avec la décroissance du flux thermique dans la cellule, le nombre de captures décroît dans le temps et le comptage devrait être plus élevé en début de cycle qu'en fin de cycle. En ouvrant une porte d'acquisition sur la quasi-totalité du temps disponible entre les impulsions du générateur de neutrons, le taux de comptage apparent obtenu est en fait une valeur moyenne.

Le taux de comptage total varie de 11014 coups/s dans la milliseconde suivant l'impulsion du générateur de neutrons à 249 coups/s pour la septième milliseconde suivant le tir générateur. Le taux de comptage dans la raie d'absorption totale de l'hydrogène varie de 59,7 coups/s dans la milliseconde suivant l'impulsion du générateur de neutrons à 0,08 coups/s pour la septième milliseconde suivant le tir générateur.

Le taux de comptage moyen apparent pour la mesure avec la porte choisie (entre 0,5 et 7,8 ms) dans le cas de la cellule vide est de 1659 coups/s pour le comptage total et 10,22 coups/s pour la raie de l'hydrogène, masquant sa variation d'un facteur 44 entre le début et la fin de la période. Il s'agit donc d'être très prudent avec les valeurs de taux de comptage affichées.

Le taux de comptage moyen est donc tout à fait supportable par la chaîne de spectrométrie utilisée, dont le bon comportement a été validé pour un taux maximum d'environ 80000 coups/s en sortie.

Période de répétition (ms)	8	8	8	8	8	8	8	8
Durée de l'impulsion (ms)	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Début porte (ms)	0,4	1,4	2,4	3,4	4,4	5,4	6,4	0,5
Fin porte (ms)	1,4	2,4	3,4	4,4	5,4	6,4	7,4	7,8
Durée porte (ms)	1	1	1	1	1	1	1	7,3
Temps réel (s)	600	600	600	600	600	600	600	3600
Temps actif MCA (s)	586	586	586	586	586	586	586	3511
Temps réel porte (s)	75	75	75	75	75	75	75	3285
Temps actif porte (s)	61	61	61	61	61	61	61	3196
Comptage (coups)								
H (2223 keV)	3644	395	100	26	11	6	5	32657
Ecart-type	60	20	10	5	3	2	2	181
Total	671870	237661	99985	55625	33117	21305	15163	5300722
Ecart-type	820	488	316	236	182	146	123	2302
Taux de comptage (coups/s)								
H (2223 keV)	59,74	6,48	1,64	0,43	0,18	0,10	0,08	10,22
Ecart-type	0,99	0,33	0,16	0,08	0,05	0,04	0,04	0,41
Total	11014,26	3896,08	1639,10	911,89	542,90	349,26	248,57	1658,55
Ecart-type	13,44	7,99	5,18	3,87	2,98	2,39	2,02	5,21

Tableau 3 : Variation du taux de comptage pendant un cycle de mesure gamma.

D'autre part, nous pouvons d'ores et déjà constater que le niveau de signal utile est négligeable dès la 4^{ème} milliseconde, l'essentiel du signal utile se produisant dans la 1^{ère} milliseconde suivant l'impulsion du générateur de neutrons. Ce constat sera utile pour l'amélioration ultérieure du niveau de signal utile (§2.3).

2.2 Premières mesures avec les paramètres nominaux du générateur de neutrons

2.2.1 Intérêt d'une porte d'acquisition

Afin de montrer expérimentalement l'intérêt d'une porte temporelle d'acquisition, une première mesure a été réalisée en continu, sans porte d'acquisition. Le codeur fonctionne donc pendant la totalité du cycle de mesure.

Le spectre obtenu est présenté figure 4. Des raies intenses et larges sont présentes à 4438 keV, 3927 keV et 3416 keV. Elles correspondent à une raie de diffusion inélastique sur le carbone et à ses raies de premier et double échappement associées.

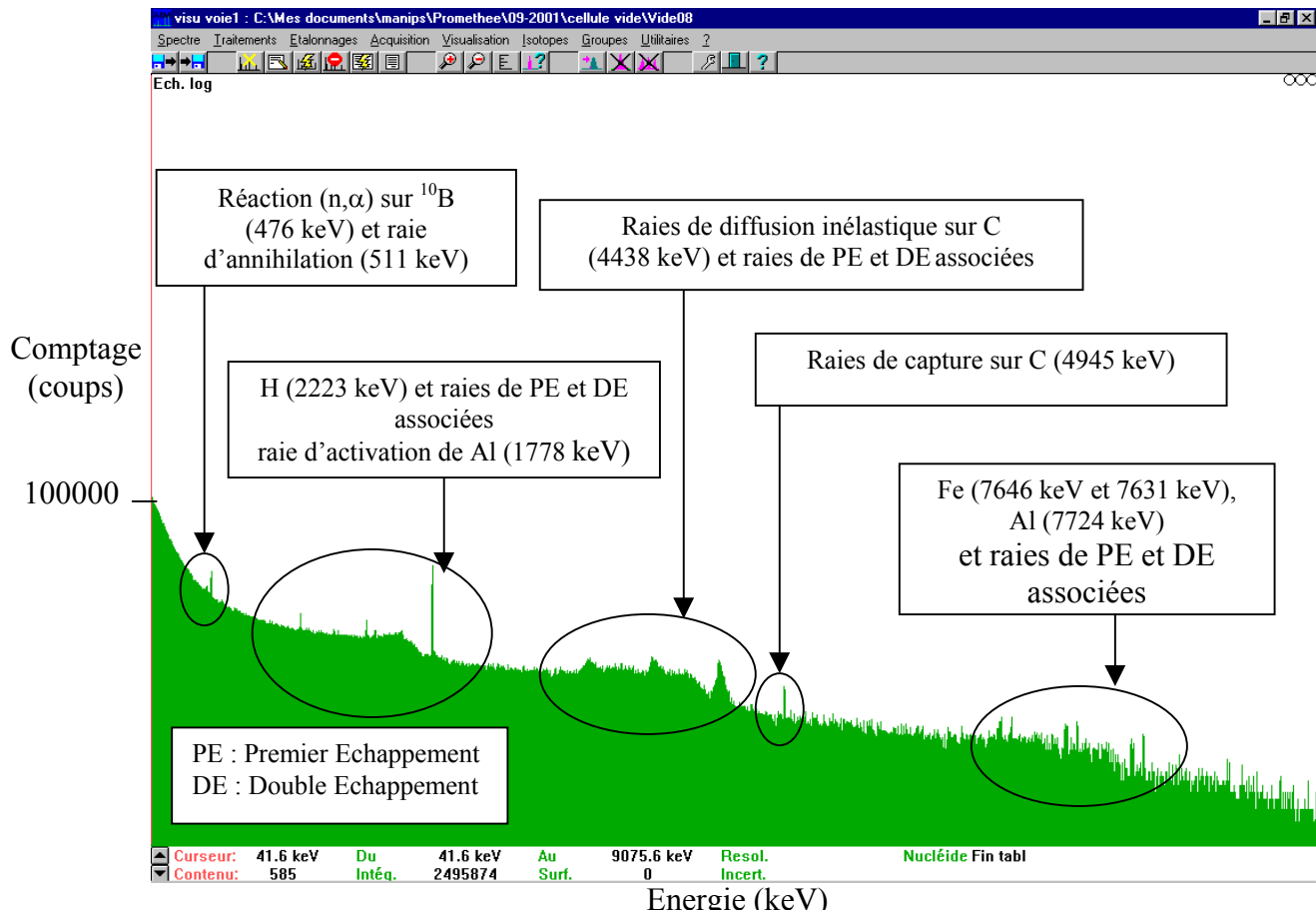


Figure 4 : Spectre obtenu en mesure continue, cellule vide.

La présence de raies de diffusions inélastiques constitue un handicap pour la détection des gamma de capture pour plusieurs raisons :

- les gamma provenant de diffusions inélastiques n'apportent pas d'information exploitable sur la teneur en éléments d'intérêt de la matrice (H et Cl),
- ils constituent un bruit de fond pour la mesure gamma, tant du point de vue énergétique (en faisant apparaître des raies gênantes dans le spectre mesuré et en augmentant le fond Compton) que du point de vue du taux de comptage (les coups engendrés par les gamma de diffusion viennent augmenter inutilement le nombre d'événements à gérer par la chaîne de spectrométrie).

La figure 5 présente le spectre obtenu cellule vide en mode impulsif, avec une porte d'acquisition ouverte entre 0,5 et 7,8 ms. Le fond Compton est diminué, et les raies de diffusion inélastique disparaissent. Bien que le niveau de signal utile provenant de l'hydrogène diminue également, le spectre obtenu est de meilleure qualité.

Compte tenu de cette mesure, et en accord avec le §2.1, la porte d'acquisition a été définie entre 0,5 et 7,8 ms.

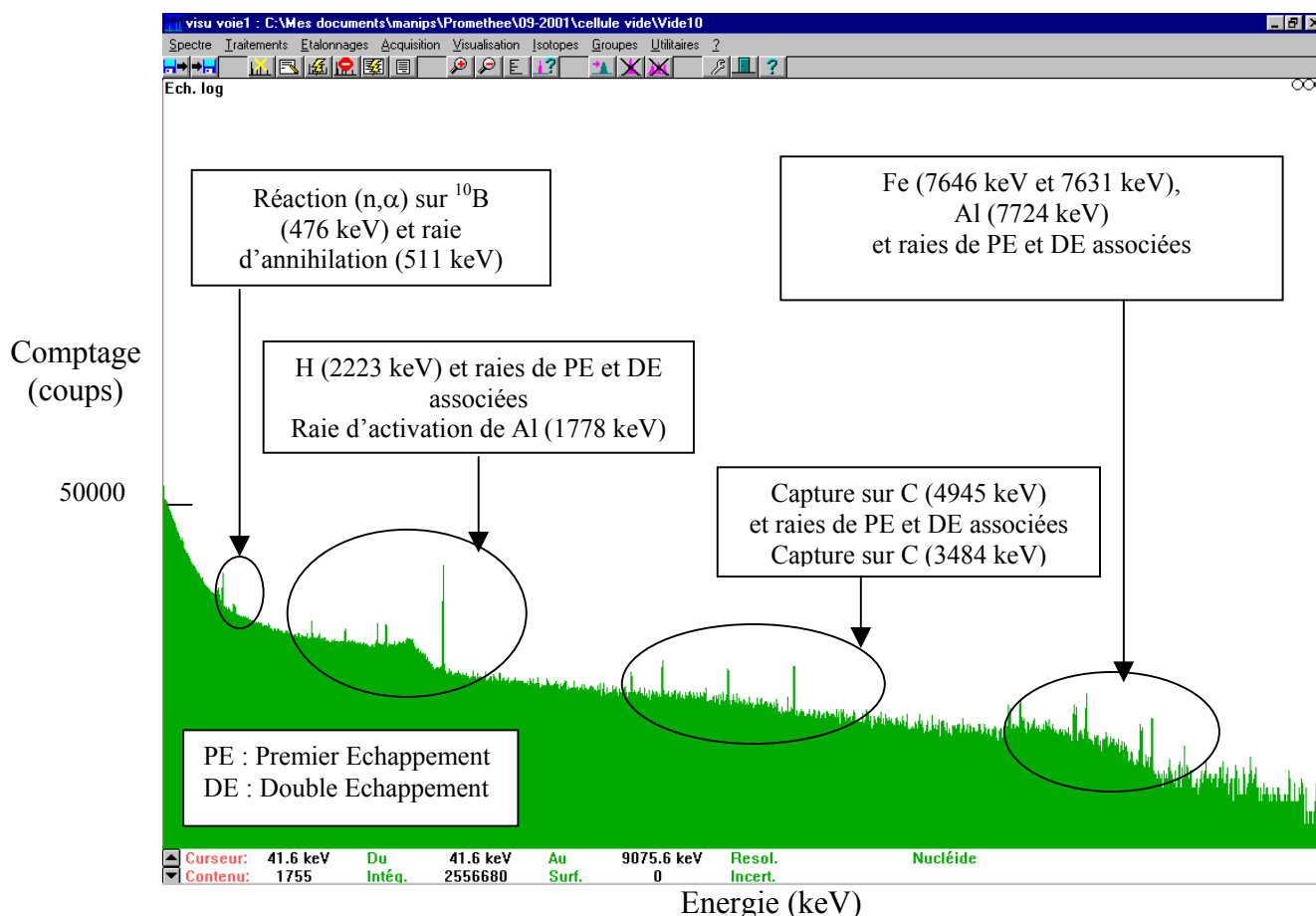


Figure 5 : Spectre obtenu cellule vide avec une période de tir de 8 ms et une porte d'acquisition entre 0,5 et 7,8 ms.

Le tableau 4 présente les comptages obtenus sans et avec porte d'acquisition dans le cas de mesures réalisées cellule vide.

En présence d'une porte temporelle d'acquisition, le taux de comptage total net diminue d'un facteur 2,67. La diminution est moins nette sur le pic de capture du carbone, mais la statistique est plus faible.

Cependant, on observe sur le bruit de fond cellule vide la présence d'une raie d'hydrogène, provenant de l'hydrogène de la cellule PROMETHEE 6. Ce bruit de fond actif sera à prendre en compte dans la détermination du signal hydrogène provenant de la matrice.

	Mesure en continu	Mesure avec porte temporelle
Période de répétition (ms)	8	8
Durée du l'impulsion (ms)	0,4	0,4
Début porte (ms)	0	0,5
Fin porte (ms)	8	7,8
Durée porte (ms)	8	7,3
Temps réel (s)	600	1800
Temps actif MCA (s)	585	1755
Temps réel porte (s)	600	1642,5
Temps actif porte (s)	585	1597,5
Comptage net (coups)		
Total	2495874	2556680
Ecart-type	1580	1599
H (2223 keV)	14046	14738
Ecart-type	119	121
C (4945 keV)	309	733
Ecart-type	18	27
Taux de comptage net (coups/s)		
Total	4266,45	1600,43
Ecart-type	2,70	1,00
H (2223 keV)	24,01	9,23
Ecart-type	0,20	0,08
C (4945 keV)	0,53	0,46
Ecart-type	0,03	0,02

Tableau 4 : Comparaison des aires nettes dans la totalité du spectre et sous les pics de capture à 2223 keV (H) et 4945 keV (C).

2.2.2 Résultats de mesure avec les paramètres nominaux

Avec les paramètres nominaux de la mesure par I.N.A. :

- période de tir : 8 ms (fréquence de 125 Hz)
- durée d'impulsion : 400 μ s (taux de travail de 5%)
- émission moyenne : 10^8 n/s (THT de 90 kV et courant cible de 40 μ A)
- porte d'acquisition ouverte entre 0,5 ms et 7,8 ms

Les mesures suivantes sont réalisées :

- cellule vide,
- fût vide,
- matrices hydrogénées (cellulose de densité 0,144 et 0,30 g/cm³),
- matrices hydrogénées et chlorées (PVC de densité 0,05, 0,18 et 0,253 g/cm³).

L'objectif de ces mesures avec les paramètres nominaux de l'I.N.A. dans PROMETHEE 6 est d'évaluer la faisabilité de la mesure des rayonnements gamma de capture simultanément à une mesure neutronique.

2.2.2.1 Dépouillement des spectres de bruit de fond actif

La figure 6 représente les spectres obtenus avec la porte d'acquisition choisie [0,5 – 7,8 ms] dans le cas de la cellule vide (courbe rouge) et en présence d'un fût vide (courbe bleu). Le temps de mesure est de 3600 s.

L'analyse de ces spectres de bruit de fond actif permet de mettre en évidence des éléments composants PROMETHEE 6 (Al, C, B) et des composants métalliques (Fe, Ni, Cr), ainsi que des raies de capture et de diffusion sur la diode germanium elle-même. La liste des raies attribuées ainsi que les raies de premier échappement (PE) et double échappement (DE) associées sont présentées dans le tableau 5.

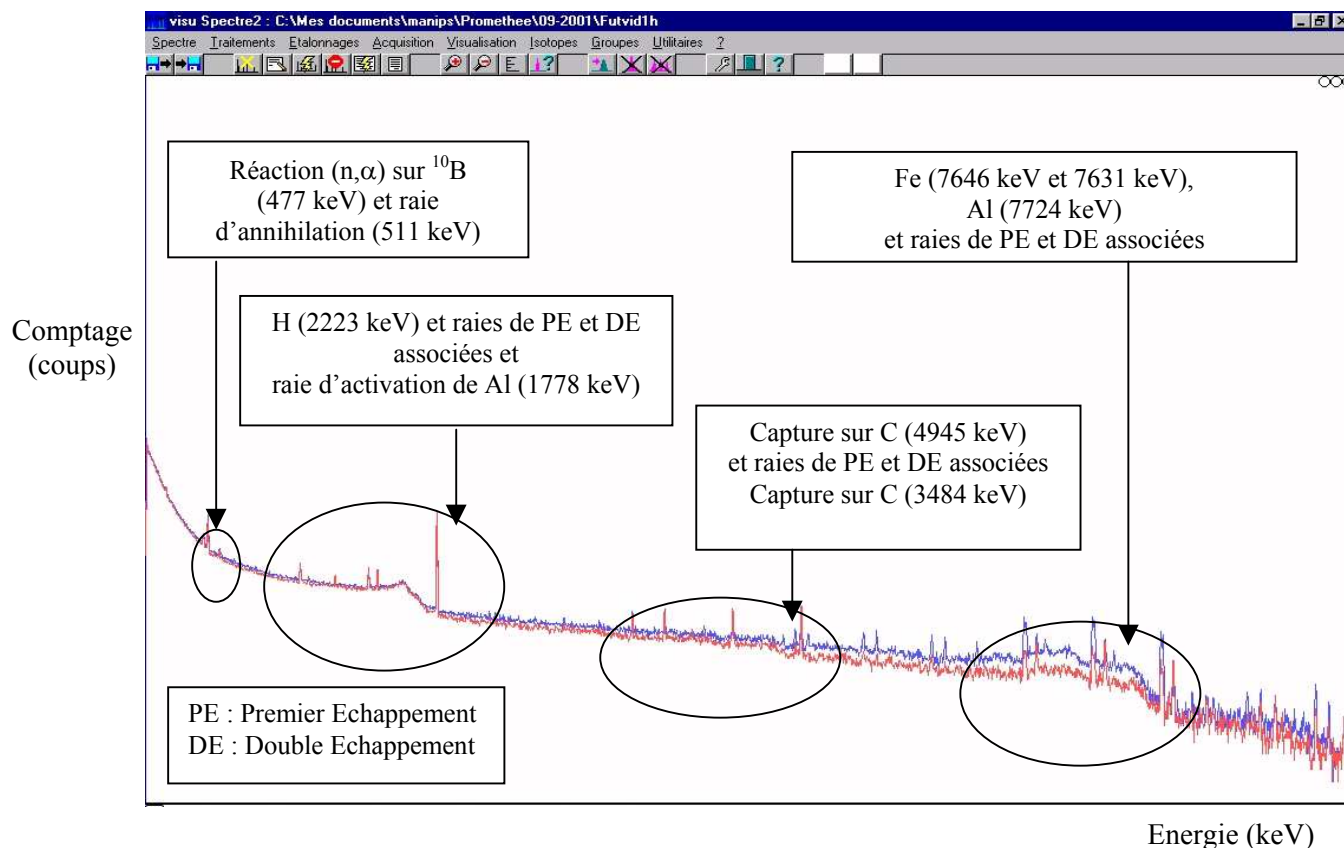


Figure 6 : Spectres de bruit de fond actif cellule vide (en rouge) et avec un fût vide (en bleu).

Le fond Compton est plus élevé en présence du fût vide. Celui-ci est composé de 10,65 kg d'acier (environ 72 % de fer, 18 % de chrome, 10 % de nickel en masse). Les raies de capture provenant de ces éléments sont donc plus intenses en présence du fût que dans le cas de la cellule vide.

Energie (keV)	Attribution	Energie tabulée (keV) [23]
139,1	Capture sur Ge et/ou (n,2n) sur Ge	139,6
353,1	Capture sur Fe	352,18
476,6	^{10}B (n, α) $^7\text{Li}^*$	477,7 *
511,9	Annihilation	511
558,3	Capture sur Cd	558,6
595,8	Capture sur Ge	596,40
609,0	Capture sur Ge	608,90
867,1	Capture sur Ge	868,40
1202,5	Capture sur H (DE)	1201,3
1712,1	Capture sur H (PE)	1712,3
1778,3	Désexcitation de ^{28}Al	1778,1 *
2224,0	Capture sur H	2223,3
3684,5	Capture sur C	3683,93
3924,3	Capture sur C (DE)	3923,3
4434,6	Capture sur C (PE)	4434,3
4946,8	Capture sur C	4945,33
5409,7	Capture sur Fe (PE)	5409,31
5509,0	Capture sur Fe (PE)	5507,48
5919,3	Capture sur Fe	5920,31
6020,8	Capture sur Fe	6018,48
6609,9	Capture sur Fe (DE)	6609,13
6623,1	Capture sur Fe (DE)	6623,45
6702,5	Capture sur Al (DE)	6701,85
7121,7	Capture sur Fe (PE)	7120,13
7137,2	Capture sur Fe (PE)	7134,45
7214,4	Capture sur Al (PE)	7212,85
7633,6	Capture sur Fe	7631,13
7649,0	Capture sur Fe	7645,45 *
7726,0	Capture sur Al	7723,85 *
7977,6	Capture sur Ni (DE)	7976,8
8021,8	Capture sur Ni (PE)	8022,4
8284,4	Capture sur Fe (DE)	8276,4
8377,0	Capture sur Cr (PE)	8373,1
8487,4	Capture sur Cr	8484,3
8535,9	Capture sur Ni	8533,4
8789,6	Capture sur Fe (PE)	8787,4
8884,5	Capture sur Cr	8884,1
8999,2	Capture sur Ni	8998,8

PE : Premier échappement, DE : Double Echappement

Tableau 5 : Raies apparaissant dans le spectre de bruit de fond actif de la cellule PROMETHEE 6 mesuré dans l'intervalle [0,5 – 7,8 ms].

Les spectres sont étalonnés en énergie de façon interne en utilisant des raies de capture isolées et bien identifiées. Elles sont repérées par une * dans le tableau 5.

2.2.2.2 Résultats des mesures sur différentes matrices

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 6. De nombreuses raies de capture sont identifiables. Les raies d'intérêt sont celles de l'hydrogène (2223 keV) et celles du chlore (cf. chapitre 2).

Le niveau de signal obtenu est globalement faible. L'atténuation due à la présence de la porte entre la matrice et le détecteur est importante.

Le dépouillement du spectre du bruit de fond permet de mettre en évidence d'autres raies que les raies provenant du chlore et de l'hydrogène. Les éléments identifiables sont des composants de PROMETHEE 6 (Al, C, B) et des composants métalliques (Fe, Ni, Cr), ainsi que des raies de capture sur la diode germanium elle-même. Des raies attendues, comme celles du cadmium (558,6 keV et 651,3 keV), ne sont pas visibles sur le spectre, probablement à cause de l'atténuation de la porte.

La raie de l'hydrogène est nettement visible, le signal net étant compris entre 5 et 10 coups/s. Remarquons immédiatement que le signal est le plus intense pour la cellule vide. En présence de matrices, l'aire nette de la raie à 2223 keV est moins importante que la valeur mesurée cellule vide. Cette diminution peut atteindre 50% pour la matrice PVC de densité 0,30 g/cm³. Les propriétés de modulation et d'absorption de chacune des matrices induisent une atténuation du nombre de captures dans les matrices, ainsi qu'une atténuation du flux gamma sortant. D'autre part, le signal de capture sur l'hydrogène provient également d'éléments extérieurs à la matrice, comme le polyéthylène de la cellule PROMETHEE 6 ou les murs en béton de la salle d'irradiation.

Parmi les raies de capture du chlore, la raie à 6110 keV est nettement supérieure aux autres raies Cl en terme de signal net (1 coup/s environ). Les autres raies exploitables sont celles à 1165 keV (0,45 coups/s), 7414 keV (0,30 coups/s) et 7790 keV (0,20 coups/s). D'autres raies provenant du chlore sont également reconnaissables, mais les signaux induits ne sont pas exploitables. Les doublets à 786 et 788 keV d'une part et 1951 et 1959 keV d'autre part ne sont pas déconvolués.

La variation de l'aire nette en fonction de la densité des matrices est peu importante. La distinction entre les différentes matrices est difficile. Le manque de précision statistique est dû au faible rendement du détecteur germanium placé à l'extérieur de la cellule de mesure (les gamma produits doivent traverser une épaisseur conséquente de matière pour atteindre le détecteur : $\mu_H/\rho = 8,769.10^{-2} \text{ cm}^2/\text{g}$, $\mu_C/\rho = 4,442.10^{-2} \text{ cm}^2/\text{g}$ pour $E\gamma = 2 \text{ MeV}$ [38]). D'autre part, la durée de fonctionnement du générateur de neutrons est limitée volontairement à 1h par point de mesure afin d'éviter tout risque de détérioration du tube.

L'utilisation des paramètres nominaux de l'I.N.A. dans PROMETHEE 6 ($\tau = 400 \text{ }\mu\text{s}$, $f = 125 \text{ Hz}$) ne permet pas de mettre en évidence une variation exploitable du signal chlore entre les différentes matrices PVC. Seule la présence ou non de chlore peut être déterminée, mais sans en préciser la quantité.

Nature et densité de la matrice (g/cm ³)	Vide	Vide	Cellulose 0,144	Cellulose 0,30	PVC 0,05	PVC 0,18	PVC 0,253
Période de répétition (ms)	8	8	8	8	8	8	8
Durée de l'impulsion (ms)	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Début porte (ms)	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
Fin porte (ms)	7,8	7,8	7,8	7,8	7,8	7,8	7,8
Durée porte (ms)	7,3	7,3	7,3	7,3	7,3	7,3	7,3
Temps réel (s)	3600	3600	2700	3600	3600	3600	5400
Temps actif MCA (s)	3511	3510	2643	3537	3508	3511	5276
Temps réel porte (s)	3285	3285	2464	3285	3285	3285	4927,5
Temps actif porte (s)	3196	3195	2407	3222	3193	3196	4803,5
Comptage net (coups)							
Total	5300722	5687928	4025278	4879637	6731669	6367563	8112396
Ecart-type	2302	2385	2006	2209	2595	2523	2848
H (2223 keV)	32657	32173	18991	22263	27326	20888	22438
Ecart-type	181	179	138	149	165	145	150
Cl (1165 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	1302	1462	1950
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	36	38	44
Cl (1951 & 1959 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	3093	2777	3233
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	56	53	57
Cl (6110 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	3107	3656	4897
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	56	60	70
Cl (7414 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	786	995	1207
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	28	32	35
Cl (7790 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	593	770	904
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	24	28	30
C (4945 keV)	1728	1558	1003	1285	1319	1070	1345
Ecart-type	42	39	32	36	36	33	37
Taux de comptage net (coups/s)							
Total	1658,55	1780,26	1672,50	1514,47	2108,26	1992,35	1688,85
Ecart-type	0,72	0,75	0,83	0,69	0,81	0,79	0,59
H (2223 keV)	10,22	10,07	7,89	6,91	8,56	6,54	4,67
Ecart-type	0,06	0,06	0,06	0,05	0,05	0,05	0,03
Cl (1165 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,41	0,46	0,41
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,01	0,01	0,01
Cl (1951 & 1959 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,97	0,87	0,67
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,02	0,02	0,01
Cl (6110 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,97	1,14	1,02
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,02	0,02	0,01
Cl (7414 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,25	0,31	0,25
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,01	0,01	0,01
Cl (7790 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,19	0,24	0,19
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,01	0,01	0,01
C (4945 keV)	0,54	0,49	0,42	0,40	0,41	0,33	0,28
Ecart-type	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01

*n.s. : Non-Significatif

Tableau 6 : Aires nettes sous les pics d'intérêt obtenues avec les paramètres nominaux de l'I.N.A. (T = 8 ms, τ = 400 μ s).

2.3 Modification des paramètres de mesure I.N.A.

Le niveau de signal atteint dans les raies de capture est insuffisant avec les paramètres nominaux de l'I.N.A. dans la cellule PROMETHEE 6. Afin d'augmenter ces signaux, deux paramètres de la mesure ont été modifiés : la largeur de la porte, puis la fréquence de tir du générateur (en conservant le taux de travail minimal admissible dans le cas du générateur de neutrons GENIE 16, soit 5%).

2.3.1 Etude de l'influence de la période de répétition du tir

Cette étude a été réalisée cellule vide, puis confirmée par des mesures avec la matrice PVC de densité $0,253 \text{ g/cm}^3$.

Les paramètres inchangés sont :

- émission moyenne de 10^8 n/s (90 kV, 40 μA),
- taux de travail de 5% (retard à l'amorçage non pris en compte).

La période de tir a été diminuée de 8 ms à 1 ms par pas de 1 ms. La largeur de la porte a été modifiée à chaque tir en conservant le même retard t_r de 0,1 ms entre la fin de l'impulsion du générateur et l'ouverture de la porte d'acquisition. De même, l'écart entre la fin de la porte d'acquisition et le début de l'impulsion suivante a été conservé constant à la valeur de 0,2 ms.

Les figures 7a et 7b illustrent le principe de l'augmentation du flux de neutrons dans le cas simplifié où le flux thermique est assimilé à une exponentielle. La diminution de la période de tir du générateur de neutrons permet d'augmenter le flux thermique interrogateur, un nouveau cycle de tir commençant avant que le flux thermique créé par le cycle précédent ait significativement diminué. La figure 7a présente le cas d'une période de répétition de 8 ms, pour une décroissance du flux thermique avec une demi-vie de 1120 μs , valeur mesurée dans la cellule PROMETHEE 6 [16]. La valeur crête est atteinte dès le deuxième cycle de tir. Sur la figure 7b, la période est de 1 ms, avec toujours une demi-vie du flux thermique de 1120 μs . Dans ce cas, le flux crête obtenu est 2,15 fois supérieur à celui obtenu précédemment.

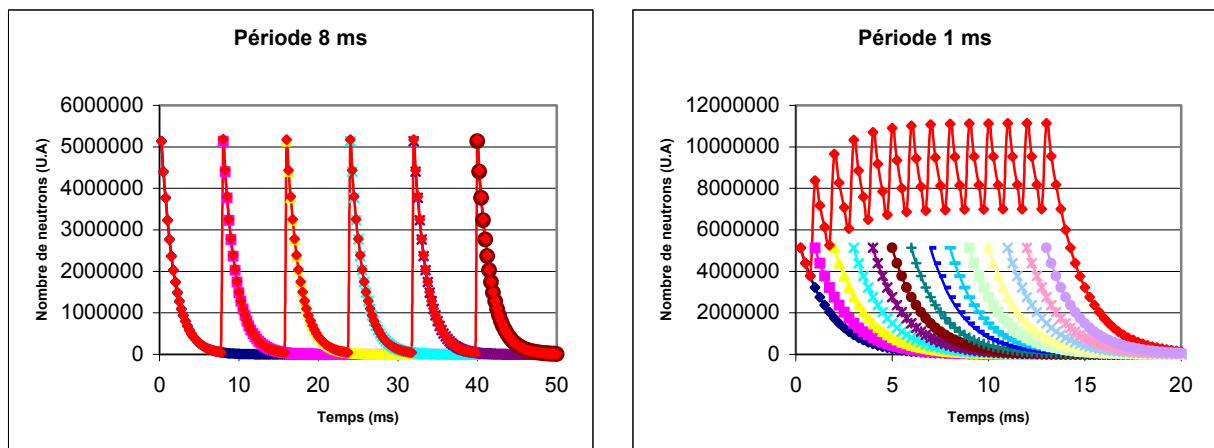


Figure 7a et 7b : Influence de la variation de la période de tir sur le niveau de flux atteint.

Le tableau 7 présente les résultats de mesure dans le cas d'une cellule vide. La raie utilisée comme indicateur de la variation du nombre de captures est celle de l'hydrogène (2223 keV). Le taux de comptage net pour cette raie est multiplié par 2,74 entre la mesure avec les

paramètres nominaux (8 ms) et celles avec la période la plus courte (1 ms). Ce facteur est du même ordre de grandeur que celui trouvé par le modèle simple présenté sur les figures 7a et 7b.

Période de répétition (ms)	7	6	4	3	2	1
Durée de l'impulsion (ms)	0,35	0,3	0,2	0,15	0,1	0,05
Début porte (ms)	0,45	0,4	0,3	0,25	0,2	0,15
Fin porte (ms)	6,8	5,8	3,8	2,8	1,8	0,8
Durée porte (ms)	6,35	5,4	3,5	2,55	1,6	0,65
Temps réel (s)	900	900	900	900	900	900
Temps actif MCA (s)	877	877	877	877	877	876
Temps réel porte (s)	816,43	810,00	787,50	765,00	720,00	585,00
Temps actif porte (s)	793,43	787,00	764,50	742,00	697,00	561,00
Comptage net (coups)						
Total	1363404	1393271	1471839	1499258	1556888	1399397
Ecart-type	1168	1180	1213	1224	1248	1183
H (2223 keV)	8725	9660	11765	12793	14837	15729
Ecart-type	93	98	108	113	122	125
C (4939 keV)	443	488	458	485	491	408
Ecart-type	21	22	21	22	22	20
Taux de comptage net (coups/s)						
Total	1718,37	1770,36	1925,23	2020,56	2233,70	2494,47
Ecart-type	1,47	1,50	1,59	1,65	1,79	2,11
H (2223 keV)	11,00	12,27	15,39	17,24	21,29	28,04
Ecart-type	0,12	0,12	0,14	0,15	0,17	0,22
C (4939 keV)	0,56	0,62	0,60	0,65	0,70	0,73
Ecart-type	0,03	0,03	0,03	0,03	0,03	0,04

Tableau 7 : Influence sur le signal net de la variation de la période de tir du générateur, en l'absence de matrice (cellule vide).

Le tableau 8 présente l'influence sur le signal net de la variation de la période de tir du générateur en présence d'une matrice PVC de densité 0,253 g/cm³.

Les mesures réalisées avec la matrice PVC de densité 0,253 g/cm³ confirment qu'il faut réduire le plus possible la période de tir du générateur afin de maximiser le signal de capture. Par exemple, le signal net sous la raie à 6110 keV du chlore (signal le plus intense) est multiplié par 1,8 entre la mesure avec la période de répétition nominale (8 ms) et celle la plus courte (1 ms).

La période choisie pour le générateur est donc prise égale à 1 ms. La largeur d'impulsion correspondante est fixée à 50 µs.

Les nouveaux paramètres retenus sont donc :

- période de tir : 1 ms (fréquence de 1000 Hz),
- durée d'impulsion : 50 µs (taux de travail de 5%, non-compris le retard à l'amorçage),
- émission moyenne : 10⁸ n/s (THT de 90 kV et un courant cible de 40 µA).

Période de répétition (ms)	8	5	3	1
Début porte (ms)	0,5	0,35	0,25	0,15
Fin porte (ms)	7,8	4,8	2,8	0,8
Durée porte (ms)	7,3	4,45	2,55	0,65
Temps réel (s)	5400	900	939	900
Temps actif MCA (s)	5276	879	917	878
Temps réel porte (s)	4927,5	801	798,15	585
Temps actif porte (s)	4803,5	780	776,15	563
Comptage net (coups)				
Total	8112396	1526666	1684280	1506033
Ecart-type	2848	1236	1298	1227
H (2223 keV)	22395	5210	6645	7857
Ecart-type	150	72	82	89
Cl (1165 keV)	1927	327	248	339
Ecart-type	44	18	16	18
Cl (6110 keV)	4746	908	1006	992
Ecart-type	69	30	32	31
Cl (7414 keV)	1220	231	276	232
Ecart-type	35	15	17	15
C (4945 keV)	1328	307	269	213
Ecart-type	36	18	16	15
Taux de comptage net (coups/s)				
Total	1688,85	1957,26	2170,04	2675,01
Ecart-type	0,59	1,58	1,67	2,18
H (2223 keV)	4,66	6,68	8,56	13,96
Ecart-type	0,03	0,09	0,10	0,16
Cl (1165 keV)	0,40	0,42	0,32	0,60
Ecart-type	0,01	0,02	0,02	0,03
Cl (6110 keV)	0,99	1,16	1,30	1,76
Ecart-type	0,01	0,04	0,04	0,06
Cl (7414 keV)	0,25	0,30	0,36	0,41
Ecart-type	0,01	0,02	0,02	0,03
C (4945 keV)	0,28	0,39	0,35	0,38
Ecart-type	0,01	0,02	0,02	0,03

Tableau 8 : Influence sur le signal net de la variation de la période de tir du générateur, en présence d'une matrice PVC de densité 0,253 g/cm³.

2.3.2 Résultats obtenus avec les nouveaux paramètres

Le tableau 9 présente les résultats obtenus avec ces nouveaux paramètres. Le comportement relatif des différents signaux est comparable à celui obtenu avec les paramètres nominaux de l'I.N.A. **Le signal issu des captures sur l'hydrogène est maximal pour la cellule vide et diminue en présence d'une matrice.** Il se confirme donc qu'il n'est pas possible de détecter l'hydrogène provenant des matrices auprès de PROMETHEE 6 de cette façon. D'autre part, comme annoncé précédemment, la diminution de la période de mesure à 1 ms permet d'augmenter le niveau du signal gamma mesuré ainsi que le taux de comptage total, exprimés en coups/s. Cependant, le nombre de coups utiles reste faible (de l'ordre de 1 à 2 c/s au mieux), à cause principalement de l'atténuation des rayonnements émis par la matrice à travers l'épaisseur de la porte de la cellule de mesure.

Nature et densité de la matrice (g/cm ³)	Vide 0	Vide 0	Cellulose 0,144	Cellulose 0,30	PVC 0,05	PVC 0,18	PVC 0,253
Période de pulse (ms)	1	1	1	1	1	1	1
Durée du pulse (ms)	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05
Début porte (ms)	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15
Fin porte (ms)	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8
Durée porte (ms)	0,65	0,65	0,65	0,65	0,65	0,65	0,65
Temps réel (s)	4154	4154	4154	4154	4154	4154	4154
Temps actif MCA (s)	4046	4046	4063	4079	4041	4046	4054
Temps réel porte (s)	2700,1	2700,1	2700,1	2700,1	2700,1	2700,1	2700,1
Temps actif porte (s)	2592,1	2592,1	2609,1	2625,1	2587,1	2592,1	2600,1
Comptage net (coups)							
Total	6467242	6687073	6036900	5362196	8015627	8004255	6849774
Ecart-type	2543	2586	2457	2316	2831	2829	2617
H (2223 keV)	73721	70118	52532	40018	61244	45580	35194
Ecart-type	272	265	229	200	247	213	188
Cl (1165 keV)	n.s. *	n.s.	n.s.	n.s.	1510	1833	1710
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	39	43	41
Cl (1951 & 1959 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	5108	3416	2780
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	71	58	53
Cl (6110 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	3143	4789	4228
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	56	69	65
Cl (7414 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	984	1118	1219
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	31	33	35
Cl (7790 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	650	826	727
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	25	29	27
C (4945 keV)	1757	1471	1430	1081	1300	1101	980
Ecart-type	42	38	38	33	36	33	31
Taux de comptage net (coups/s)							
Total	2494,98	2579,79	2313,78	2042,66	3098,30	3087,94	2634,43
Ecart-type	0,98	1,00	0,94	0,88	1,09	1,09	1,01
H (2223 keV)	28,44	27,05	20,13	15,24	23,67	17,58	13,54
Ecart-type	0,10	0,10	0,09	0,08	0,10	0,08	0,07
Cl (1165 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,58	0,71	0,66
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,02	0,02	0,02
Cl (1951 & 1959 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	1,97	1,32	1,07
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,03	0,02	0,02
Cl (6110 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	1,21	1,85	1,63
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,02	0,03	0,03
Cl (7414 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,38	0,43	0,47
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,01	0,01	0,01
Cl (7790 keV)	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,25	0,32	0,28
Ecart-type	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	0,01	0,01	0,01
C (4945 keV)	0,68	0,57	0,55	0,41	0,50	0,42	0,38
Ecart-type	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01

* : n.s. = Non-Significatif

Tableau 9 : Aires nettes sous les pics d'intérêt avec les nouveaux paramètres d'irradiation (T = 1 ms, τ = 50 μ s).

La différence la plus marquante entre les deux jeux de mesures concerne la variation du signal chlore en fonction de la densité de la matrice. Avec les nouveaux paramètres, il est possible de mettre en évidence une variation significative de la raie du chlore à 6110 keV, qui est minimum pour la matrice de densité la plus faible ($0,05 \text{ g/cm}^3$), et augmente d'un peu plus de 10% (supérieur à 2 écart-types) pour la matrice de densité moyenne ($0,18 \text{ g/cm}^3$) puis diminue pour atteindre une valeur d'environ 85% du signal de la matrice de faible densité pour la matrice de densité la plus élevée ($0,253 \text{ g/cm}^3$). Cette variation n'est pas significative pour les raies à 1165 keV, 7414 keV et 7790 keV (figure 8).

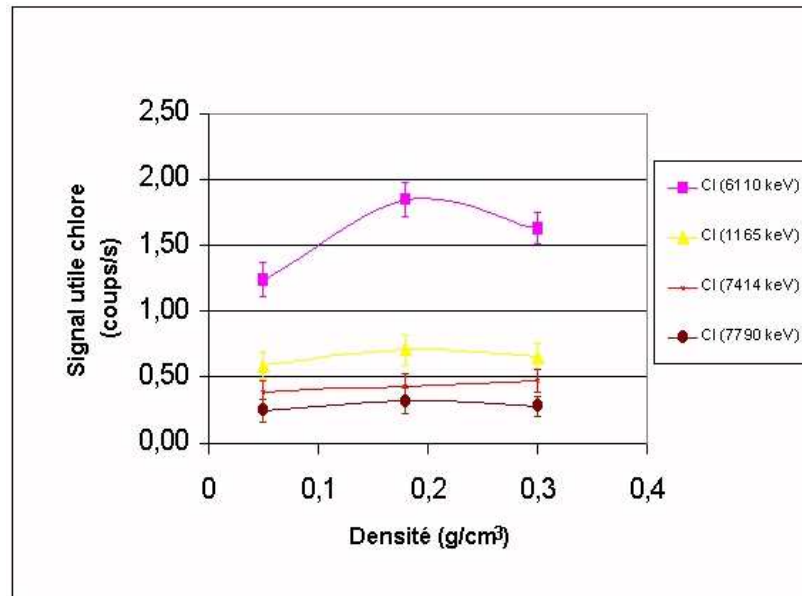


Figure 8 : Variation du signal chlore en fonction de la densité dans des matrices composées uniquement de PVC.

Cette variation est différente de celle pressentie par l'équation (3) du chapitre 2, à savoir une croissance monotone du signal avec la matrice. Au lieu de cela, on observe un maximum pour une valeur intermédiaire de densité ($0,18 \text{ g/cm}^3$), entraînant la possibilité de déduire deux densités différentes d'un même signal. Le domaine de validité de la méthode de correction envisagée s'en trouve alors restreint.

Comme on le verra au § 2.2.3 du chapitre 4, cette variation « en cloche » du signal provenant des matrices est liée à la combinaison d'une interrogation inhomogène de la matrice par les neutrons interrogateurs (liée aux effets de matrice) et du rendement de détection du détecteur germanium en fonction du point d'émission dans la matrice des rayonnements gamma.

2.4 Conclusion des expérimentations auprès de PROMETHEE 6

Les expérimentations menées auprès de la cellule de mesure I.N.A. existante ont montré son inadéquation pour la détection des rayonnements gamma de capture issus des matrices.

L'hydrogène présent dans l'environnement de la diode germanium (béton, polyéthylène de la porte), vient masquer le signal provenant éventuellement de la matrice irradiée. Ce point est bloquant pour la méthode de correction envisagée.

La présence de chlore dans les matrices peut être décelée, à des niveaux de signal toutefois extrêmement faibles. La modification des paramètres de la mesure a permis d'améliorer le

niveau de signal, mais les meilleures performances atteintes restent insuffisantes (inférieurs à 2 c/s au mieux).

Des modifications mécaniques de la cellule PROMETHEE 6 auraient peut-être pu permettre d'augmenter le niveau de signal. S'il était possible de retirer les parois extérieures en polyéthylène, le signal hydrogène diminuerait, et la diode pourrait être rapprochée de 10 cm, augmentant ainsi son rendement de détection. D'autre part, en perçant un canal d'insertion à travers une des parois en graphite de la cellule, la diode serait rapprochée au plus près de la matrice, maximisant alors le rendement de détection, mais le taux de comptage à traiter augmenterait également dans des proportions importantes.

Cependant, il a été décidé de ne réaliser aucune modification de PROMETHEE 6, car elles auraient eu pour conséquence de dégrader de façon importante les performances des mesures d'I.N.A. Or celle-ci doit rester en l'état. Le choix a donc été fait de réaliser une nouvelle cellule de mesure adaptée à la détection des rayonnements gamma de capture provenant des matrices.

3 Développement d'une cellule de mesure adaptée : apport de la modélisation

Les principales difficultés rencontrées lors des études de faisabilité auprès de PROMETHEE 6 ont été :

- le faible rendement de détection de la diode germanium, dû à la distance entre le fût et le détecteur d'une part (environ 60 cm) et à la présence de la porte de la cellule PROMETHEE 6 faisant écran d'autre part (graphite et blocs de détection),
- le fort bruit de fond gamma observé, notamment la présence d'une raie à 2223 keV caractéristique de la capture neutronique sur l'hydrogène. Ce bruit de fond provient sans doute de l'hydrogène du polyéthylène de PROMETHEE 6 ainsi que de celui contenu dans le béton des murs de la salle d'irradiation.

Le second point est bloquant, car il n'a pas été possible de mettre en évidence les rayonnements gamma provenant de l'hydrogène entrant dans la composition des matrices placées dans la cellule PROMETHEE 6, et ce quels que soient le type et la densité des matériaux testés (PVC ou cellulose).

Afin de pallier ces difficultés, il a été décidé de concevoir une cellule de mesure spécifique, de facture relativement simple et modulable. Cette cellule a été baptisée REGAIN (pour REcherche des Gamma d'Activation et d'Irradiation Neutronique). L'objectif est de disposer d'un outil spécifique pour l'étude des signaux gamma provenant des captures sur les éléments constitutifs des matrices des colis de déchets. La fonction première de cette nouvelle cellule prototype est de permettre la détection des rayonnements gamma de capture émis par les éléments composant les matrices, en particulier le signal provenant de l'hydrogène, afin de permettre la définition d'une méthode de correction des effets de matrice reposant sur la caractérisation d'éléments d'intérêt dans les matrices (chlore et hydrogène en particulier [39]).

Le cahier des charges porte sur cinq points principaux :

- la géométrie de la cellule : elle doit être compacte, car l'espace disponible pour son installation est limité. Les dimensions maximales de la nouvelle cellule sont d'environ $1,5 \times 1,5 \times 2 \text{ m}^3$. La taille de la cavité destinée à recevoir le fût est définie à partir de celle de la cellule PROMETHEE 6. La manutention des fûts doit être aisée, et conduit à conserver les dimensions de $55 \times 55 \times 90 \text{ cm}^3$, permettant d'accueillir des fûts de 118 litres ;
- sa composition : la présence d'hydrogène dans la cellule est proscrite. Les parois sont par conséquent uniquement en graphite, matériau modérateur utilisé dans la cellule PROMETHEE 6. Les matériaux de structure sont dans la mesure du possible en aluminium, afin de limiter la présence d'acier qui engendre de nombreuses raies de capture (particulièrement sur le fer, mais également sur le nickel et le chrome [23]).
- la source de neutrons utilisée : il s'agit d'un générateur de neutrons GENIE 16 (SODERN), capable d'émettre jusqu'à 10^8 n/s dans 4π , en mode impulsif réglable. Le générateur de neutrons est placé à l'horizontale dans un canal d'insertion, ce qui permettra de faire varier la position de la source de neutrons par simple translation du générateur ;
- le détecteur gamma : il s'agit de la diode germanium de type N, de 30% de rendement de détection, utilisée lors des essais sur PROMETHEE 6. Le capot de la diode a un diamètre de 7,62 cm.
- les paramètres dimensionnants sont les suivants :
 - le taux de capture dans la matrice doit être maximum,
 - le flux de neutrons rapides dans la diode germanium doit être minimisé pour conserver les performances nominales du détecteur pendant la durée de fonctionnement choisie. Celle-ci est fixée arbitrairement à 1000 heures d'irradiation (pour une fluence maximum intégrée par la diode de 10^9 neutrons rapides/cm²). Cette valeur, relevée dans la littérature [32], a été déterminée expérimentalement sur un détecteur germanium planaire de type N. Cela correspond alors à une valeur du tally F2 de MCNP maximale de $2,8 \cdot 10^6 \text{ n/cm}^2/\text{neutron source}$ pour une émission du générateur de neutrons égale à 10^8 n/s ,
 - le détecteur gamma doit être positionné de façon à maximiser son rendement de détection. Pour cela, un canal d'instrumentation permettant d'approcher la diode près de la matrice sera creusé dans la paroi opposée au générateur de neutrons,
 - le critère prépondérant est le signal gamma attendu dans un pic d'intérêt : raie à 2223 keV de l'hydrogène, et raies du chlore.

Il va donc s'agir d'obtenir un compromis entre le signal gamma (estimé par le produit du taux de capture dans la matrice par le rendement de détection du détecteur) et le flux de neutrons dans le détecteur germanium, dans un espace disponible limité pour l'implantation de la cellule et pour une position de la diode permettant d'atteindre un rendement de détection gamma maximum.

3.1 Utilisation du code de calcul MCNP dans le cadre du dimensionnement de REGAIN

Les paramètres d'intérêt sont dans ce cas le flux de neutrons rapides dans la diode germanium, le nombre de réactions (n, γ) sur l'hydrogène et le chlore des matrices, et le rendement de détection de la diode vis-à-vis des rayonnements gamma de capture émis par ces éléments.

Le flux de neutrons rapides dans la diode germanium est obtenu en utilisant une « tally » de type F2 qui donne la fluence à travers une surface (particules par cm^2). Pour cela, un cylindre de 7,62 cm de diamètre et de longueur est défini et on demande le F2 sur les deux extrémités circulaires (numérotées 210.1 et 210.3) du cylindre, sur la surface latérale (numérotée 210.2) ainsi que sur la somme de ces trois surfaces. Pour forcer le tally F2 à ne tenir compte que du flux rentrant, l'intérieur du cylindre est vide et d'importance 0 (toutes les particules entrant dans ce volume sont perdues). De plus, le flux est calculé pour différentes plages d'énergies entre 0 et 14 MeV. Le découpage en énergie choisi est le suivant : de 0 à 0,025 eV (thermique), de 0,025 à 1 eV (épi-thermique), de 1 eV à 1 keV et de 1 keV à 14 MeV.

La fluence rapide maximale (10^9 n/cm^2) est alors donnée par la relation suivante :

$$10^9 = F2 \cdot \Phi_n \cdot t_{\max}$$

Avec :

10^9 : fluence rapide maximale dans la diode germanium (n/cm^2)

F2 : valeur du tally calculée par MCNP ($(\text{n/cm}^2) / \text{neutron source}$)

Φ_n : émission du générateur de neutron (neutron source / s)

t_{\max} : durée maximale d'utilisation de la diode (s)

Le taux de capture dans la matrice est calculé au moyen d'un tally F4, modifié par une carte FM4 permettant de calculer le nombre de réactions de type (n, γ) (réaction codée par le numéro 102). Le même découpage en énergie que pour le F2 est utilisé. D'autre part, la matrice est maillée en 16 isovolumes pour tenir compte de l'inhomogénéité du flux de neutrons interrogateurs (cf. figure 9). Le maillage utilisé consiste en 8 secteurs et 2 cylindres concentriques. On tient compte ainsi de la variation du flux suivant x et y et en profondeur (radialement). La symétrie verticale de la cellule permet de s'affranchir d'un découpage selon l'axe z.

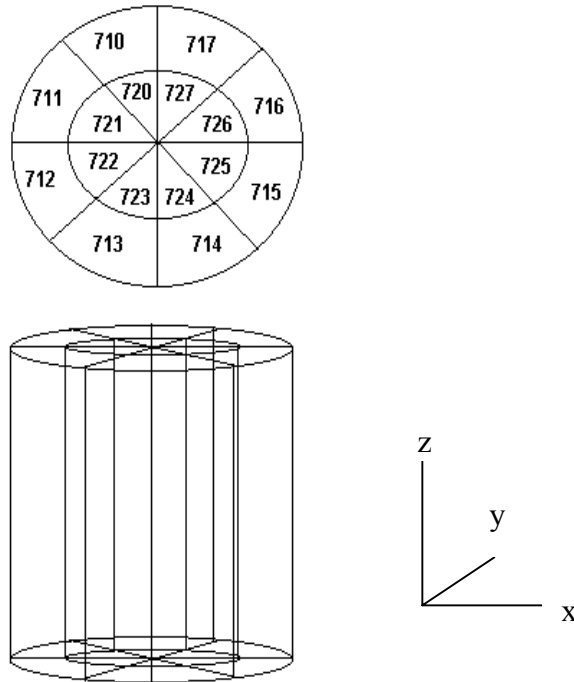


Figure 9 : Maillage de la matrice.

Le rendement de détection de la diode germanium est également calculé via le dépôt d'énergie dans le volume de la diode germanium (« tally » F8). Les raies gamma utilisées sont 2223,3 keV (raie de l'hydrogène, $I_\gamma = 100\%$ [23]) et 6110,8 keV (raie du chlore, $I_\gamma = 20,58\%$ [24]). La source gamma utilisée pour le calcul est une source distribuée dans les mailles, isotrope, et pondérée par le taux de capture dans chacune des mailles. Ainsi, il est tenu compte dans ce calcul de l'inhomogénéité du flux des gamma de capture créés sous irradiation neutronique, due à l'inhomogénéité du flux de neutrons interrogateurs dans la matrice.

3.2 Paramètres de la modélisation MCNP

La méthode employée consiste à partir de la cellule PROMETHEE 6 existante et à la modifier pour atteindre les critères imposés par le cahier des charges.

La cellule PROMETHEE 6 a les dimensions suivantes : $160 \times 180 \times 150 \text{ cm}^3$. Elle comporte une paroi extérieure en polyéthylène de 10 cm d'épaisseur. Le réflecteur arrière en graphite a une épaisseur de 70 cm. Le générateur de neutrons est placé en retrait de 20 cm par rapport à la cavité intérieure. Une cavité de $55 \times 55 \times 90 \text{ cm}^3$ permet d'accueillir un fût de 118 litres. Ces dimensions, permettant une manutention des fûts aisée, seront conservées pour la nouvelle cellule.

Autour de cette cavité, une nouvelle cellule de forme parallélépipédique est dessinée, composée de parois en graphite, et comportant d'un côté du fût un espace pour placer le générateur de neutrons. La face opposée est pourvue d'un trou cylindrique permettant d'approcher le détecteur au plus près du fût (figure 10).

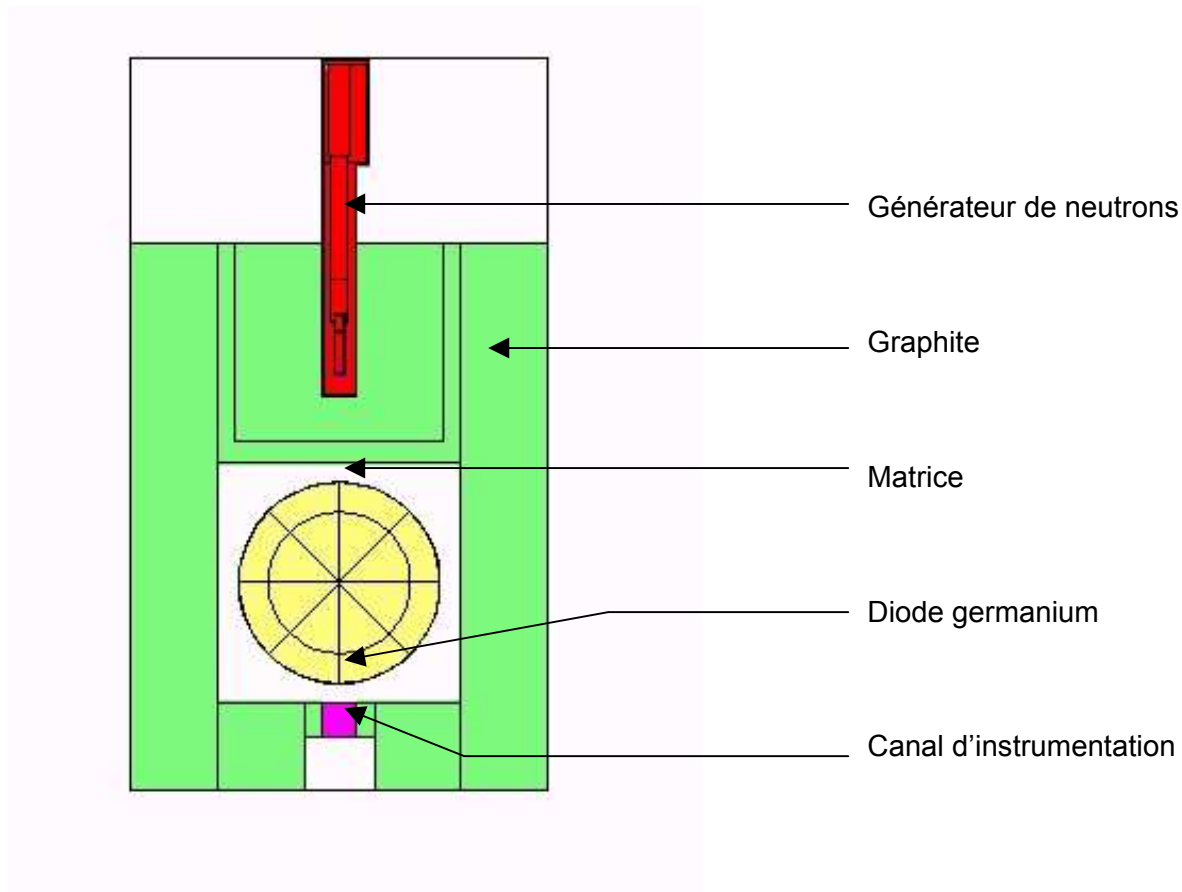


Figure 10 : Schéma de la cellule modélisée.

L'incertitude statistique issue de MCNP est annoncée avec les valeurs dans les tableaux correspondants. Elle est inférieure à 3% dans la plupart des cas. Le cas de la cellule PROMETHEE 6 actuelle est différent puisque la diode est dans ce cas beaucoup plus éloignée de la matrice. Dans ce cas, l'incertitude associée aux rendements de détection est supérieure à 10 % pour la raie du chlore.

3.3 Synthèse des calculs réalisés

Le détail de la méthode employée pour réaliser le dimensionnement de REGAIN est présenté en annexe 1. Le cas de référence est constitué par la cellule PROMETHEE 6 (P6 existante). Dans un premier temps, les matériaux autres que le graphite en sont retirés (P6 modifiée tout graphite). Puis les épaisseurs des différentes parois sont optimisées, avec un générateur de neutrons simplifié placé à la verticale. La suite de l'étude porte sur la position et le réalisme de la représentation du générateur de neutrons. Enfin, l'intérêt de l'adjonction d'une couronne de plomb est étudié. Le tableau 10 donne les enseignements de cette étude par calcul des caractéristiques à donner à une cellule dédiée à la détection des gamma de capture.

Le gain en terme de signal utile pour les raies d'intérêt est très important si l'émission du générateur est maintenue constante à 10^8 n/s : gain d'un facteur 680 sur le signal hydrogène et gain d'un facteur 110 sur le signal chlore pour la nouvelle cellule par rapport à PROMETHEE 6, avec une couronne en plomb autour du générateur de neutrons.

Dans le cas où l'on s'impose une durée de vie de la diode germanium de 1000 h sous irradiation, l'émission neutronique doit être diminuée et le gain est moindre, mais reste

conséquent : gain d'un facteur 50 sur le signal hydrogène et gain d'un facteur 8 sur le signal chlore pour la nouvelle cellule avec couronne en plomb.

L'intérêt de l'adjonction d'une couronne en plomb est multiple. Celle-ci permet de gagner un facteur 2 sur les signaux gamma d'intérêt par rapport à la même cellule ne comportant pas de couronne en plomb autour du générateur dans le cas d'une durée de 1000 heures d'irradiation. D'autre part, le taux de capture est plus élevé de 60 %. Enfin, le flux rapide dans la diode est diminué de 30 %. Cependant, la présence de plomb pourrait constituer une source de bruit de fond pour le signal gamma (raies de capture à 6736 keV et 7368 keV [23], section efficace de capture thermique du plomb : 174 mb, section efficace de diffusion inélastique à 2,5 MeV : 170 mb [40]).

	P6 existante	P6 modifiée tout graphite	Générateur vertical simplifié	Générateur vertical réaliste	Générateur horizontal réaliste	Avec couronne de plomb (20 cm x 5 cm)
ρ 2223,3 keV(%)	$9,98.10^{-7}$	$5,51.10^{-4}$	$3,37.10^{-4}$	$3,44.10^{-4}$	$3,55.10^{-4}$	$3,38.10^{-4}$
ρ 6110,8 keV (%)	$2,67.10^{-6}$	$2,54.10^{-4}$	$1,69.10^{-4}$	$1,64.10^{-4}$	$1,69.10^{-4}$	$1,61.10^{-4}$
τ capture (cm^{-3} par neutron émis)	$9,65.10^{-7}$	$1,41.10^{-6}$	$9,84.10^{-7}$	$9,56.10^{-7}$	$1,00.10^{-6}$	$1,61.10^{-6}$
Flux rapide (n/cm^2) par neutron source)	$8,48.10^{-7}$	$1,03.10^{-5}$	$1,25.10^{-5}$	$1,28.10^{-5}$	$1,39.10^{-5}$	$1,08.10^{-5}$
Durée maximale (h) $\Phi = 10^8 \text{ n/s}$	3277	270	222	216	200	258
Signal H 2223,3 keV (c/s)	0,3	275,0	117,4	116,5	125,5	192,5
Signal Cl 6110,8 keV (c/s)	6,1	843,6	391,7	370,2	397,8	612,5
Emission maximale (n/s) Durée = 1000 h	$3,28.10^8$	$2,70.10^7$	$2,22.10^7$	$2,16.10^7$	$2,00.10^7$	$2,58.10^7$
Signal H (c/s)	1,1	74,2	26,1	25,2	25,1	49,6
Signal Cl (c/s)	19,9	227,5	87,0	80,1	79,6	158,0

Tableau 10 : Synthèse des calculs MCNP réalisés pour le dimensionnement de REGAIN.

3.4 Conclusion sur le dimensionnement

Le dimensionnement d'une cellule en graphite destinée à la détection des rayonnements gamma de capture a été réalisé par calcul MCNP. Ces calculs permettent sur la base des critères fixés (taux de capture maximal dans la matrice, flux de neutrons rapides minimal dans la diode) de dimensionner la cellule suivante :

Epaisseur des parois latérales et avant :	20 cm
Epaisseur du plafond et du plancher :	20 cm
Epaisseur de la paroi arrière :	50 cm
Retrait du générateur :	30 cm

Ces dimensions permettent d'espérer des signaux de plusieurs dizaines de coups par seconde pour les raies de capture des éléments d'intérêt (H et Cl).

Dans l'optique de protéger la diode germanium des neutrons, il est à envisager d'utiliser un capot constitué d'un matériau neutrophage, par exemple du carbonate de lithium [40]. L'impact sur les mesures gamma serait double : cela permettrait de prolonger la durée de vie de la diode en absorbant une partie du flux neutronique thermique et de réduire le bruit de fond gamma dû aux captures sur les éléments constitutifs du détecteur germanium (germanium du cristal, mais aussi aluminium du capot). Enfin, l'utilisation d'un collimateur en plomb pourrait permettre de réduire le bruit de fond gamma, mais la présence de raies gamma supplémentaires dues aux réactions (n, γ) sur le plomb sont à attendre.

Dans la réalité, la cellule construite possède des parois latérales et avant de 21 cm d'épaisseur, ainsi qu'une armature en aluminium qui n'a pas été modélisée lors de cette phase de dimensionnement. De même, la distance de retrait du générateur retenue pour les expérimentations a fait l'objet d'une étude spécifique, pour tenir compte des contraintes liées à la chaîne de spectrométrie gamma (taux de comptage élevé). Enfin, le matériau protecteur employé pour limiter la détérioration de la diode germanium s'est porté sur le carbure de bore.

La figure 11 présente une vue de la cellule REGAIN, instrumentée et installée dans sa casemate d'irradiation. Une porte coulissante permet de mettre en place un fût de 118 litres dans la cavité d'irradiation. La diode germanium (dont le réservoir d'azote liquide est visible) est installée en face avant de la cellule.



Figure 11 : Cellule REGAIN instrumentée, dans sa casemate d'irradiation.

4 Conclusion

La mise en œuvre de la spectrométrie des gamma de capture auprès de la cellule PROMETHEE 6 a mis en évidence son inadéquation au problème posé.

En effet, aucun signal hydrogène provenant de la matrice n'a pu être mis en évidence, à cause du niveau de signal parasite présent dans le bruit de fond actif. D'autre part, le niveau de signal chlore s'est révélé faible, même s'il est pour sa part exploitable. L'emploi d'une porte temporelle d'acquisition a montré son intérêt pour « nettoyer » les spectres des contributions des gamma provenant des diffusions inélastiques et du fond Compton associé.

La modification des paramètres de tir du générateur, associée à l'optimisation des paramètres temporels de la porte d'acquisition, ont montré qu'il est néanmoins possible d'augmenter le niveau de signal utile global. Cette optimisation ne peut cependant rien pour l'obtention d'un signal hydrogène.

Face à cette mise en échec, l'approche retenue en vue de l'obtention de signaux gamma utilisables pour la méthode de correction a consisté à faire le choix d'une nouvelle cellule. Le développement de REGAIN, cellule modulaire destinée aux travaux du LDMN sur la recherche des gamma de capture dans un volume de 118 litres, a été mené à l'aide du code de calcul MCNP, permettant le transport des neutrons et des photons, ainsi que le calcul de grandeurs d'intérêt, tels que des fluences, des taux de réactions et des rendements de détection.

La cellule ainsi dimensionnée tient compte des diverses contraintes physiques liées à la recherche des gamma de capture. Le matériau modérateur utilisé est le graphite. L'utilisation de matériau hydrogénés a été proscrite, de façon à maximiser le signal utile hydrogène provenant des matrices. L'aluminium utilisé pour les armatures de REGAIN est relativement transparent aux neutrons, et ne génère pas de rayonnements de capture. Il s'active cependant, et émet donc des rayonnements gamma, qui ne posent toutefois pas de problème majeur dans l'application visée dans cette thèse.

La mise en œuvre de la recherche des rayonnements gamma de capture provenant des matrices dans le dispositif REGAIN, en vue de l'obtention d'une méthode de correction des effets de matrice, fait l'objet du chapitre 4.

TABLE DES FIGURES ET TABLEAUX

<u>TABLEAU 1 : CODE DES COULEURS UTILISÉES DANS LA FIGURE 1.</u>	55
<u>FIGURE 1 : REPRÉSENTATION DES FLUENCES DE NEUTRONS ($n/cm^2/neutron\ source$) CALCULÉES PAR MCNP EN FACE AVANT DE LA CELLULE PROMETHEE 6.</u>	55
<u>TABLEAU 2 : CODE DES COULEURS UTILISÉS DANS LA FIGURE 2.</u>	56
<u>FIGURE 2 : REPRÉSENTATION DE LA FLUENCE GAMMA ($\gamma/cm^2/\gamma\ source$) CALCULÉE PAR MCNP EN FACE AVANT DE LA CELLULE PROMETHEE 6.</u>	56
<u>FIGURE 3 : POSITION DE LA DIODE GERMANIUM DEVANT LA PORTE DE LA CELLULE PROMETHEE 6.</u>	57
<u>TABLEAU 3 : VARIATION DU TAUX DE COMPTAGE PENDANT UN CYCLE DE MESURE GAMMA.</u>	59
<u>FIGURE 4 : SPECTRE OBTENU EN MESURE CONTINUE, CELLULE VIDE.</u>	60
<u>FIGURE 5 : SPECTRE OBTENU CELLULE VIDE AVEC UNE PÉRIODE DE TIR DE 8 MS ET UNE PORTE D'ACQUISITION ENTRE 0.5 ET 7.8 MS.</u>	61
<u>TABLEAU 4 : COMPARAISON DES AIRES NETTES DANS LA TOTALITÉ DU SPECTRE ET SOUS LES PICS DE CAPTURE À 2223 KEV (H) ET 4945 KEV (C).</u>	62
<u>FIGURE 6 : SPECTRES DE BRUIT DE FOND ACTIF CELLULE VIDE (EN ROUGE) ET AVEC UN FÛT VIDE (EN BLEU).</u>	63
<u>TABLEAU 5 : RAIES APPARAISSANT DANS LE SPECTRE DE BRUIT DE FOND ACTIF DE LA CELLULE PROMETHEE 6 MESURÉ DANS L'INTERVALLE [0,5 – 7,8 MS].</u>	64
<u>TABLEAU 6 : AIRES NETTES SOUS LES PICS D'INTÉRÊT OBTENUES AVEC LES PARAMÈTRES NOMINAUX DE L'I.N.A. (T = 8 MS, $\tau = 400\ \mu s$).</u>	66
<u>FIGURE 7A ET 7B : INFLUENCE DE LA VARIATION DE LA PÉRIODE DE TIR SUR LE NIVEAU DE FLUX ATTEINT.</u>	67
<u>TABLEAU 7 : INFLUENCE SUR LE SIGNAL NET DE LA VARIATION DE LA PÉRIODE DE TIR DU GÉNÉRATEUR, EN L'ABSENCE DE MATRICE (CELLULE VIDE).</u>	68
<u>TABLEAU 8 : INFLUENCE SUR LE SIGNAL NET DE LA VARIATION DE LA PÉRIODE DE TIR DU GÉNÉRATEUR, EN PRÉSENCE D'UNE MATRICE PVC DE DENSITÉ $0.253\ g/cm^3$.</u>	69
<u>TABLEAU 9 : AIRES NETTES SOUS LES PICS D'INTÉRÊT AVEC LES NOUVEAUX PARAMÈTRES D'IRRADIATION (T = 1 MS, $\tau = 50\ \mu s$).</u>	70
<u>FIGURE 8 : VARIATION DU SIGNAL CHLORE EN FONCTION DE LA DENSITÉ DANS DES MATRICES COMPOSÉES UNIQUEMENT DE PVC.</u>	71
<u>FIGURE 9 : MAILLAGE DE LA MATRICE.</u>	75
<u>FIGURE 10 : SCHÉMA DE LA CELLULE MODÉLISÉE.</u>	76
<u>TABLEAU 10 : SYNTHÈSE DES CALCULS MCNP RÉALISÉS POUR LE DIMENSIONNEMENT DE REGAIN.</u>	77
<u>FIGURE 11 : CELLULE REGAIN INSTRUMENTÉE, DANS SA CASEMATE D'IRRADIATION.</u>	78

Chapitre 4

Etude de faisabilité de la méthode de correction et résultats

Ce chapitre présente les expériences menées auprès de la cellule REGAIN dans le cadre de l'étude de faisabilité de la méthode de correction envisagée. La méthode de mesure inter-pulse est d'abord employée, mais des difficultés dans le traitement du temps mort variable et les taux de comptage élevés ont conduit à revenir à une irradiation continue. L'amélioration des signaux utiles hydrogène et chlore apportée par REGAIN par rapport à PROMETHEE 6 est démontrée expérimentalement. La recherche du placement optimal de la diode a également été réalisée. La méthode de correction est ensuite développée à partir des données expérimentales et des abaques calculés par MCNP. Les performances théoriques de cette méthode sont alors évaluées.

Ce chapitre concerne l'étude de la faisabilité de la méthode de correction des effets de matrice proposée. Dans ce but, il est nécessaire de détecter les rayonnements gamma d'intérêt provenant de l'hydrogène et du chlore des matrices auprès de la cellule REGAIN, pour obtenir des signaux utilisables pour la méthode de correction envisagée. Les calculs menés pour son dimensionnement permettent en effet d'espérer détecter expérimentalement un signal provenant de l'hydrogène des matrices et d'augmenter le niveau de signal utile provenant du chlore par rapport aux mesures effectuées auprès de PROMETHEE 6 (cf. chapitre 3).

De la même manière qu'auprès de PROMETHEE 6, la méthode de spectrométrie gamma utilisant une porte temporelle d'acquisition est d'abord mise en œuvre auprès de la cellule REGAIN, afin d'en exploiter les avantages. Une amélioration a été apportée afin de diminuer le temps d'acquisition total nécessaire en utilisant trois codeurs en parallèle pour la mesure. Cela permet de définir trois zones d'intérêt temporelles simultanément. D'autre part, la diode germanium est protégée du flux de neutrons thermiques interrogateurs par un matériau neutrophage (carbure de bore).

Les résultats expérimentaux sont ensuite utilisés pour développer la méthode de correction présentée au chapitre 2. Le choix de la raie du chlore la plus appropriée pour la méthode est effectué en recherchant le gain théorique le plus élevé sur la masse annoncée par I.N.A. à l'aide du coefficient d'étalonnage corrigé ainsi obtenu.

1 Conditions de mesure

Les conditions de mesure adoptées sont proches de celles utilisées dans le cadre des études expérimentales auprès de PROMETHEE 6 : générateur de neutrons GENIE 16, diode germanium de type N, de 30% de rendement relatif, et son électronique associée, décrits au chapitre 3.

1.1 Utilisation de trois codeurs en parallèle

Le signal issu de l'amplificateur est distribué sur trois codeurs, mis individuellement en coïncidence avec une porte temporelle d'acquisition. Les codeurs ont les fonctions suivantes (figure 1) :

- le premier codeur fonctionne en continu, sans porte d'acquisition. Le spectre obtenu comporte donc les raies signant toutes les réactions se produisant pendant l'irradiation ;
- le deuxième codeur reçoit une porte autorisant le codage pendant l'impulsion du générateur de neutrons. Le spectre obtenu comporte essentiellement les raies des rayonnements produits par les neutrons rapides ;
- le troisième codeur reçoit une porte autorisant le codage entre les impulsions du générateur de neutrons. Le spectre obtenu comporte donc principalement les raies des rayonnements produits par les neutrons en cours de thermalisation et les réactions de désactivation.

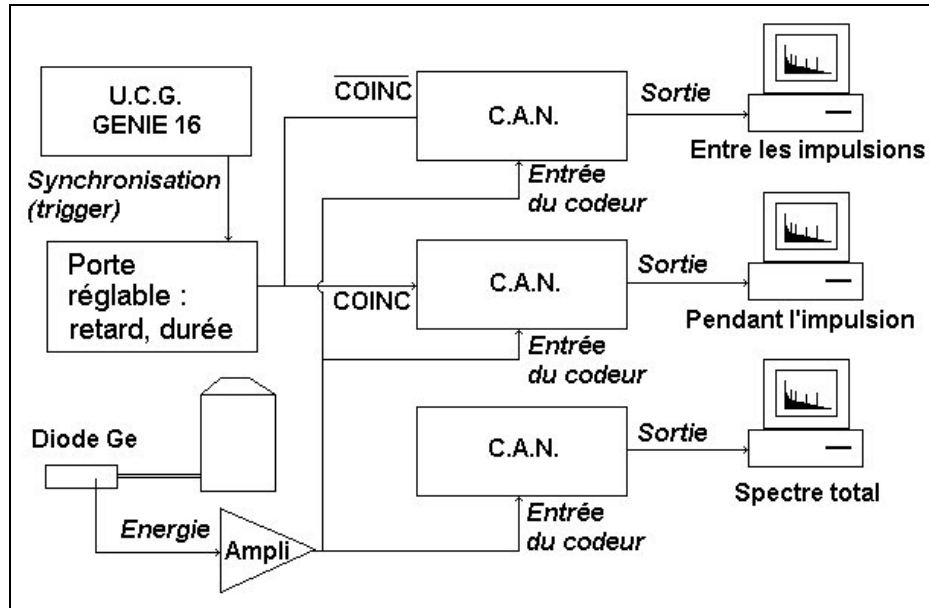
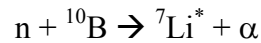


Figure 1 : Schéma simplifié de câblage des trois codeurs en parallèle.

1.2 Protection de la diode germanium avec un capot B_4C

La problématique est celle présentée au chapitre 2 (§ 2.1.2). Afin de limiter la détérioration des performances de la diode, liée notamment aux signaux parasites induits par les réactions neutroniques avec le germanium, un matériau absorbeur de neutrons est placé autour du détecteur. Dans ce but, un matériau adapté est le carbure de bore, contenant du ^{10}B . Cet isotope réagit avec les neutrons selon la réaction suivante :



Le noyau de lithium 7 créé se désexcite ensuite en émettant un gamma de 478 keV (2,59 %), signant la présence du bore. La section efficace de cette réaction est adaptée au filtrage des neutrons sur une grande gamme en énergie (figure 2). La section efficace de réaction à l'énergie thermique vaut 3746 b [7].

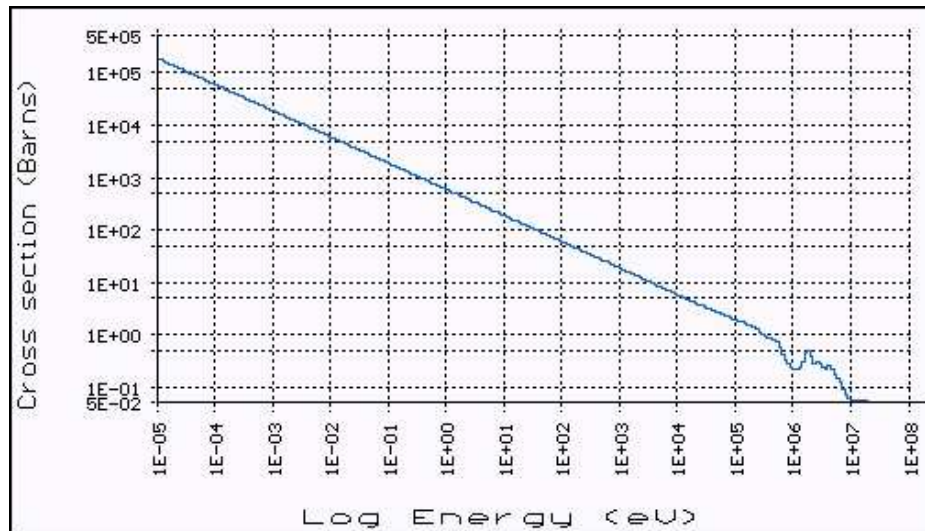


Figure 2 : Section efficace de la réaction $^{10}\text{B} (n,\alpha) {}^7\text{Li}^*$ [7].

L'influence de l'utilisation d'un capot de carbure de bore a été étudiée en utilisant le générateur de neutrons en mode impulsif et avec les paramètres de l'I.N.A. habituellement employées pour la cellule de mesure PROMETHEE 6 (bouffée de neutrons de 400 μ s répétée toutes les 8 μ s). Les signaux sont mesurés en continu, pendant l'impulsion [0 – 400 μ s] et hors de l'impulsion [400 – 8000 μ s], en utilisant les codeurs comme indiqué au paragraphe précédent.

Le tableau 1 présente les valeurs en coups/s des aires nettes obtenues pour les raies à 478 keV (bore), à 598 keV (capture sur le germanium) et dans le spectre total en l'absence et en présence du capot B₄C. Ce dernier est constitué d'un cylindre de carbure de bore de 5 mm d'épaisseur fermé à une extrémité par une plaque de même épaisseur.

Elément	Energie (keV)	Sans capot B ₄ C			Avec capot B ₄ C		
		Total (c/s)	[0 – 400 μ s] (c/s)	[400 – 8000 μ s] (c/s)	Total (c/s)	[0 – 400 μ s] (c/s)	[400 – 8000 μ s] (c/s)
B	478	n.s*	n.s	n.s	9058	330	8802
Ge	598	411	15	392	n.s	n.s	n.s
Spectre total	[0 – 8192]	87661	12697	75990	88578	12963	76266

* : n.s = Non-Significatif

Tableau 1 : Utilité d'un capot de B₄C autour de la diode germanium.

L'utilisation du capot en carbure de bore permet de faire disparaître la raie de capture à 598 keV du germanium. Le taux de comptage total reste quant à lui à peu près constant. Cependant, la présence du bore contribue pour plus de 10% au signal total mesuré (9058 coups/s dans le pic de pleine énergie pour un total dans le spectre de 88578 coups/s). Ce niveau élevé de signal bore présente l'inconvénient d'occuper la chaîne de spectrométrie gamma inutilement et donc de diminuer la part du signal utile traité. Pour pallier cet inconvénient, un autre matériau adapté au filtrage des neutrons thermiques est le lithium 6, qui réagit selon la réaction suivante : ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ ($\sigma_{\text{th}} = 940$ b [40]). Cette réaction n'induit pas d'émission gamma parasite. Disponible au laboratoire dans une enveloppe en polyéthylène scellée, son usage a été naturellement proscrit, pour limiter la part du signal hydrogène parasite.

La figure 3 présente la comparaison des spectres obtenus avec et sans capot B₄C, lors d'une mesure en continu et lors d'une mesure utilisant une porte temporelle d'acquisition, entre les impulsions du générateurs de neutrons. Sans capot, le niveau du fond Compton est élevé, et de nombreuses raies attribuables à des réactions avec le germanium de la diode sont visibles. L'utilisation du capot en carbure de bore permet donc de faire disparaître les raies de capture sur le germanium et de diminuer le niveau du fond Compton. Dans le cas de l'utilisation d'une porte d'acquisition temporelle, la diminution du fond Compton est encore plus importante que dans le cas de la mesure en continu. En effet, dans ce cas, seules les réactions avec les neutrons ralentis sont mesurées, dans une gamme d'énergie plus favorable encore à la capture des neutrons par le bore (cf. figure 2).

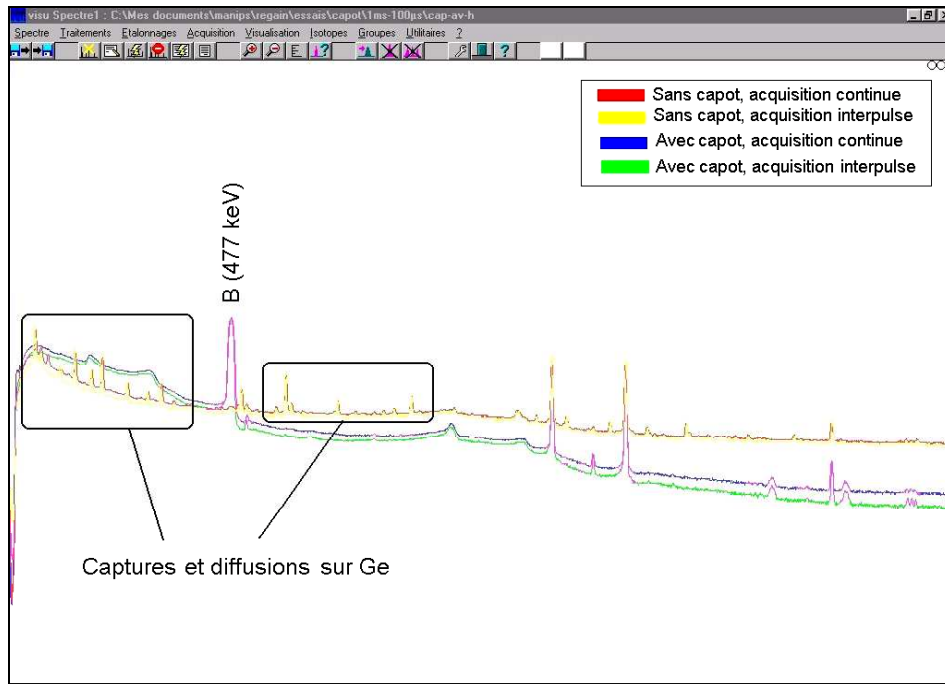


Figure 3 : Comparaison des spectres obtenus avec et sans capot, en acquisition continue et interpulse.

Dans la suite des études expérimentales auprès de REGAIN, le capot en carbure de bore est donc conservé autour de la diode.

2 Etude expérimentale auprès de REGAIN

La mise en œuvre de la méthode d'acquisition interpulse employée auprès de PROMETHEE 6 s'est rapidement heurtée au fort bruit de fond gamma actif dans REGAIN. A la différence de PROMETHEE 6, la cellule REGAIN, de par sa conception, entraîne une augmentation du niveau de signal total à traiter par la chaîne de spectrométrie : diode au plus près de la matrice et à l'intérieur de la paroi de la cellule, distance réduite entre la source de neutrons et le détecteur.

2.1 Difficultés liées à l'utilisation d'une porte temporelle d'acquisition dans REGAIN

Les principales difficultés rencontrées sont les suivantes :

- l'émission en mode impulsionnel du générateur de neutrons engendre un temps mort variable, maximal pendant la bouffée de neutrons, puis décroissant pendant le reste de la période de tir ;
- le taux de comptage est élevé. Il peut dans certaines conditions dépasser les capacités maximales de traitement de la chaîne de spectrométrie (environ 80000 coups/s codés et enregistrés). Cela entraîne un temps mort élevé de la chaîne d'acquisition, allant parfois jusqu'à la paralysie du codeur.

2.1.1 Temps mort élevé : utilisation d'une source de ^{60}Co comme moniteur

Le temps mort affiché par le logiciel d'acquisition Visu [41] est le simple ratio (temps réel – temps actif)/temps réel. Le temps réel est la durée totale d'acquisition, en secondes. Il ne prend en compte ni le temps mort, ni le temps d'ouverture de la porte

d'acquisition. Le temps actif correspond à la durée en secondes pendant laquelle le codeur reçoit et traite les signaux provenant de l'amplificateur (*ie.* temps réel – temps mort). Dans le cas de forts taux de comptage, associés à une porte d'acquisition temporelle, le temps mort affiché par Visu ne correspond donc pas au temps mort effectif de la chaîne lors de la mesure.

Dans le but d'obtenir une estimation du temps mort (appelé temps mort corrigé dans les tableaux 2 et 3), une source de cobalt 60 est placée contre le capot de la diode germanium. La période (5,27 ans) de cette source isotopique permet de considérer comme constante son activité pendant la durée des expérimentations. Le nombre de coups codés par la chaîne de spectrométrie dans les pics de pleine énergie du ^{60}Co (1173 keV et 1332 keV) en l'absence d'irradiation neutronique sert de référence.

Les tableaux 2 et 3 montrent les résultats obtenus dans le cas d'une irradiation de 900 s (temps réel TR) avec les paramètres temporels suivants pour l'émission du générateur de neutrons : 100 μs de largeur d'impulsion, 1000 μs de période de répétition. La tension varie entre 75 kV et 90 kV, pour un courant cible de 40 μA , faisant varier le flux de neutrons entre 7.10^7 et 10^8 n/s environ [42]. Le temps mort corrigé est calculé par simple proportionnalité avec le signal cobalt de référence, en tenant compte du temps d'ouverture de la porte (TR = 90 s dans l'impulsion, TR = 810 s entre les impulsions).

$$TM_{\text{corr}} = (TR - S_{\text{Co mesuré}} / S_{\text{Co ref}}) / TR \times 100$$

Avec :

TM_{corr} : temps mort corrigé (%)

TR : temps réel (s)

$S_{\text{Co mesuré}}$: aire nette mesurée du cobalt (coups)

$S_{\text{Co ref}}$: aire nette de référence du cobalt (coups/s)

Le tableau 2 présente le cas d'une porte d'acquisition ouverte pendant la durée de l'impulsion du générateur de neutrons, de 0 à 100 μs . Le temps mort moyen pendant l'ouverture de la porte varie ainsi de 65,3 % à 75,6 % quand la THT augmente de 75 à 90 kV, et non de 31,7 % à 44,7 % comme indiqué par le logiciel d'acquisition. Un tel niveau de temps mort est difficilement compatible avec l'utilisation de la chaîne de spectrométrie dans de bonnes conditions.

	Temps réel (s)	^{60}Co 1173 keV (coups)	Temps mort affiché (%)	Temps mort corrigé (%)
Référence Emission nulle	90	98947	8,9	-
75 kV 40 μA ~ 7.10^7 n/s	90	37675	31,7	65,3
80kV 40 μA ~ 8.10^7 n/s	90	32985	35,8	69,6
85kV 40 μA ~ 9.10^7 n/s	90	29881	40,2	72,5
90kV 40 μA ~ 10^8 n/s	90	26511	44,7	75,6

Tableau 2 : Variation du temps mort avec l'émission neutronique pendant l'impulsion du générateur de neutrons (TR = 90 s).

Le tableau 3 présente le cas d'une porte d'acquisition ouverte entre les impulsions du générateur de neutrons, entre 100 μ s et 1000 μ s. Le temps mort moyen pendant l'ouverture de la porte varie dans ce cas de 26,7 % à 39,1 %. Ce temps mort est important, mais reste inférieur à 50 %. Sa hausse est le reflet de l'augmentation du nombre d'évènements à traiter par la chaîne dû à l'élévation du flux neutronique.

	Temps réel (s)	⁶⁰ Co 1173 keV (coups)	Temps mort affiché (%)	Temps mort corrigé (%)
Référence Emission nulle	810	890523	8,9	-
75 kV 40 μ A ~ 7.10 ⁷ n/s	810	716252	31	26,7
80kV 40 μ A ~ 8.10 ⁷ n/s	810	676561	35,1	30,8
85kV 40 μ A ~ 9.10 ⁷ n/s	810	636351	39,6	34,9
90kV 40 μ A ~ 10 ⁸ n/s	810	595005	43,9	39,1

Tableau 3 : Variation du temps mort avec l'émission neutronique entre les impulsions du générateur de neutrons (TR = 810 s).

L'utilisation d'une source de cobalt 60 comme moniteur permet donc de donner une information sur le temps mort moyen de la chaîne de spectrométrie pendant l'ouverture de la porte d'acquisition. Cependant, ces valeurs ne représentent que des moyennes sur la durée de la porte d'acquisition choisie, et ne permettent pas d'obtenir le temps mort « instantané », auquel l'expérimentateur n'a pas accès.

2.1.2 Etude de la variation du temps mort pendant une période de tir du générateur de neutrons

Afin de mieux cerner la variation du temps mort corrigé pendant une période de tir du générateur de neutrons, une porte d'acquisition de durée 50 μ s a été ouverte successivement sur 20 intervalles entre 0 et 1000 μ s. La variation du temps mort corrigé ainsi obtenue est présenté sur la figure 4.

On constate une variation temporelle du temps mort corrigé de 25 % à 100 %. Il suit l'évolution du flux neutronique thermique dans la cellule. La chaîne de spectrométrie gamma est ainsi complètement bloquée (100 % de temps mort) pendant la deuxième moitié de l'impulsion du générateur de neutrons (entre 50 et 100 μ s). Pendant cet intervalle de temps, aucun coup n'est compté par la chaîne de spectrométrie. A la fin de la bouffée de neutrons, vers 100 μ s, le temps mort corrigé décroît rapidement jusqu'à moins de 50 % dès 150 μ s, puis atteint une valeur moyenne proche de 30 % au bout de 500 μ s.

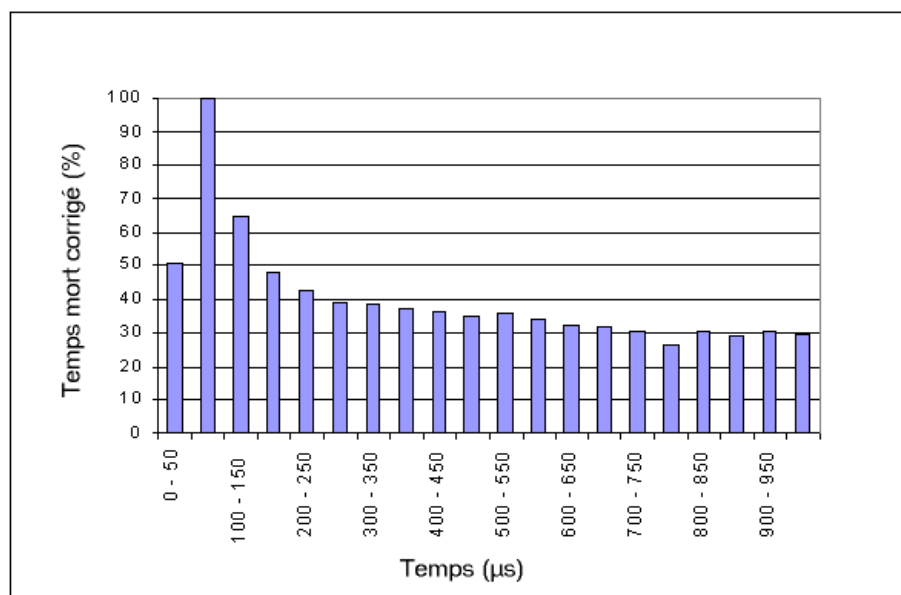


Figure 4 : Variation temporelle du temps mort corrigé pendant une période de tir du générateur de neutrons (100 μs - 1000 μs).

Ce résultat oblige également à choisir la zone temporelle d'acquisition avec circonspection, dans une zone pour laquelle le temps mort est inférieur à 50 % et dans laquelle sa moyenne temporelle est relativement stable, afin d'éviter des erreurs dans son estimation. On peut ainsi observer que le temps mort corrigé moyen évalué sur l'intervalle [100 – 900 μs] vaut 39,1 %, alors qu'il varie en fait de 64,6 % dans l'intervalle [100 – 150 μs] à 29,3 % dans l'intervalle [950 – 1000 μs].

Enfin, le niveau de temps mort constant à partir de 500 μs indique que l'essentiel des réactions de capture se produit dans la première moitié de la période de répétition. Il est donc inutile d'aller chercher à augmenter le signal utile en ouvrant une porte d'acquisition dans la deuxième moitié de la période de répétition. La décroissance du flux thermique dans la cellule étant intrinsèquement fonction de la géométrie de cette dernière, il serait judicieux de chercher à augmenter le nombre d'événements utiles en augmentant la fréquence de tir du générateur de neutrons.

2.2 Recherche des paramètres temporels optimums pour la mesure avec porte temporelle d'acquisition

Les conclusions du paragraphe précédent conduisent à définir une porte d'acquisition plus courte que la durée disponible entre les impulsions du générateur, puisque le signal utile est majoritairement présent dans la première moitié de la période de répétition du générateur de neutrons. Dans le même temps, puisque la porte d'acquisition est refermée avant la fin de la période de répétition du tir du générateur, il est possible d'augmenter la période de tir de façon à élever encore le niveau de flux disponible, comme décrit au chapitre 3 § 2.3.1. De même, il est possible de diminuer la durée de l'impulsion du générateur de neutrons.

La période de répétition a donc été diminuée jusqu'à 400 μs. Conjointement, la durée du tir du générateur a été diminuée jusqu'à 20 μs. Les résultats obtenus en 300 s de temps réel d'acquisition sur un fût de densité 0,30 g/cm³ constitué entièrement de PVC dans le but d'augmenter le signal utile sont présentés dans le tableau 4 :

Période de répétition	1000 μ s	400 μ s	400 μ s	400 μ s
Durée d'impulsion	100 μ s	100 μ s	50 μ s	20 μ s
Emission neutronique	90 kV 40 μ A 10 ⁸ n/s	90 kV 40 μ A 10 ⁸ n/s	90 kV 40 μ A 10 ⁸ n/s	90 kV 40 μ A 10 ⁸ n/s
Porte temporelle	[100 μ s – 1000 μ s]	[100 μ s – 400 μ s]	[50 μ s – 400 μ s]	[20 μ s – 400 μ s]
Cl (786/788 keV)	41497	40045	46066	49045
Cl (1165 keV)	38467	37043	42361	43558
⁶⁰ Co (1332 keV)	265651	208139	246676	268235
H (2223 keV)	4531	4778	5335	5711
Cl (7414 keV)	2124	1965	2669	2393
Cl (7790 keV)	1732	1534	1948	1853
Total [0 - 8192 keV] (c)	19237030	17780584	20187660	21114048
Total [0 - 8192 keV] (c/s)	115409,9	135939,9	129840,5	125479,7
Temps Actif corrigé (s)	167	131	155	168
Temps Mort corrigé (%)	38,3	41,9	40,8	41,0

Tableau 4 : Variation des signaux d'intérêt en fonction des paramètres temporels.

Le nombre de coups utiles disponibles pendant la durée réelle d'acquisition de 300 s varie peu quand la période de répétition diminue de 1000 μ s à 400 μ s : les valeurs sont statistiquement équivalentes (à 2 écarts-type). Cela confirme le fait que le flux thermique disparaît après 500 μ s (cf. §2.1.2).

A période de répétition fixée (400 μ s), la diminution de la largeur de l'impulsion de neutrons permet d'augmenter le niveau de signal utile en coups. Le gain est d'environ 10 % entre une impulsion de 100 μ s et une impulsion de 20 μ s.

Cependant, si le temps mort évalué est de l'ordre de 40 %, le taux de comptage corrigé estimé est quant à lui de l'ordre de 115000 à 135000 c/s. Ces valeurs, supérieures aux capacités limites de la chaîne de spectrométrie, sont susceptibles de conduire à des interprétations de signaux erronées, puisque le comportement de la chaîne d'acquisition n'a pas été validé pour ces valeurs élevées.

Les conditions de mesure permettant d'obtenir un signal utile maximal en mode impulsif ne permettent donc pas de travailler dans des conditions satisfaisantes pour la chaîne de spectrométrie utilisée. Le temps mort semble géré correctement, mais le taux de comptage en sortie est de 50 % supérieur aux limites avérées de la chaîne de spectrométrie [30]. Dans ces conditions, il est préférable de chercher des conditions de mesures différentes, mais restant dans les limites de fonctionnement de la chaîne d'acquisition.

2.3 Mesures en irradiation continue

Les difficultés rencontrées lors des mesures en mode impulsif, liées aux forts taux de comptage et au traitement du temps mort variable, ont conduit à choisir des conditions de mesure plus simples, malgré leur inconvénient : le compromis ainsi réalisé consiste à accepter de détecter les rayonnements parasites, qui engendrent un haut niveau de bruit de fond et des raies gamma inutiles pour l'application visée, afin de privilégier l'obtention d'un temps mort constant dans le temps. Pour cela, le générateur de neutrons est utilisé en mode continu et l'acquisition des signaux gamma se fait elle aussi en continu, sans porte temporelle d'acquisition. Dans ces conditions, des signaux interprétables pour la méthode de correction des effets de matrice sont obtenus.

L'émission du générateur de neutrons et la position dans son canal d'insertion ont été optimisées pour répondre aux critères imposés : temps mort inférieur à 50 % et taux de comptage maximal limité à 80000 coups/s en sortie. Cela conduit à utiliser pour le générateur de neutrons GENIE 16 une tension accélératrice maximale de 85 kV ($\sim 9.10^7$ n/s) et à placer la source du générateur de neutrons à 35 cm en recul dans la paroi interne de la cellule REGAIN.

Les matrices utilisés pour ces essais sont identiques à celles mesurées dans PROMETHEE 6, auxquelles ont été ajoutées des matrices composées de mélanges des matrices initiales. La gamme des matrices mesurées est la suivante :

- cellulose de densité 0,07, 0,144, 0,28, 0,377 g/cm³ ;
- PVC de densité 0,05, 0,10, 0,18, 0,253, 0,30 g/cm³ ;
- matrices mélangées PVC/cellulose de diverses compositions, de 0,08 à 0,30 g/cm³ (cf. tableau 5).

Teneur massique en PVC (%)	Densité (g/cm ³)
34,13	0,14
31,20	0,08
18,44	0,136
16,10	0,30
11,30	0,22
8,33	0,30

Tableau 5 : Teneurs en PVC des matrices contenant un mélange de PVC et de cellulose.

2.3.1 Evaluation du temps mort en irradiation continue

Le temps mort corrigé a été évalué de la même façon qu'en mode impulsif, en utilisant une source de ⁶⁰Co comme moniteur.

Le tableau 6 présente la variation du temps mort corrigé dans le cas d'une irradiation continue, pour des émissions estimées allant de 7.10^7 à 10^8 n/s. Dans ce cas, le temps mort affiché par le logiciel d'acquisition et le temps mort corrigé sont similaires (à moins de 5% près), variant de 27 % à 39 % avec l'augmentation de l'émission neutronique.

La gestion du temps mort de la chaîne de spectrométrie gamma est donc dans ce cas grandement facilitée, puisqu'il est constant pendant toute la durée d'acquisition.

	Temps réel (s)	Temps actif (s)	⁶⁰ Co 1173 keV	Temps mort (%)	Temps actif corrigé (%)	Temps mort corrigé (%)
Référence Emission nulle	350	312	531345	10,86	-	-
75 kV 40μA ~ 7.10 ⁷ n/s	300	220	373038	26,67	219	26,99
80kV 40μA ~ 8.10 ⁷ n/s	300	211	356033	29,67	209	30,31
85kV 40μA ~ 9.10 ⁷ n/s	300	203	329402	32,33	193	35,53
90kV 40μA ~ 10 ⁸ n/s	300	192	309709	38,67	182	39,38

Tableau 6 : Variation du temps mort avec le flux neutronique en irradiation continue.

2.3.2 Comparaison des performances de PROMETHEE 6 et REGAIN

La diode a tout d'abord été placée au milieu de la face avant de la cellule REGAIN (figure 5). Cet emplacement correspond à celui utilisé pour le dimensionnement de la cellule, et va ainsi permettre de comparer les performances des cellules de mesure PROMETHEE 6 et REGAIN.



Figure 5 : Diode dans la face avant de la cellule REGAIN.

Le tableau 7 présente la comparaison des niveaux de signaux obtenus avec la diode placée en face avant de REGAIN par rapport à ceux obtenus auprès de PROMETHEE 6. Les paramètres d'acquisition sont les suivants pour les deux cellules :

- PROMETHEE 6 :
 - générateur en mode impulsionnel, bouffée de neutrons de durée 50 μs répétée toutes les 1000 μs, émission nominale de 10⁸ n/s (90kV, 40 μA) ;
 - acquisition à l'aide d'une porte temporelle ouverte entre 50 et 800 μs.

- REGAIN :

- générateur en mode continu, émission de 9.10^7 n/s environ (85 kV, 40 μ A) ;
- acquisition des signaux gamma en continu, sans porte temporelle.

Nature et densité de la matrice (g/cm ³)	PROMETHEE 6			REGAIN		
	Vide 0	Cellulose 0,144	PVC 0,253	Vide 0	Cellulose 0,144	PVC 0,253
Temps réel d'acquisition (s)	2700	2700	2700	900	900	900
Comptage total (c/s)	2395	2236	2537	94771	67938	75486
H (2223 keV) (c/s)	27,3	19,5	13,0	3,6	87,2	155,8
Cl (786/788 keV) (c/s)	n.s*	n.s*	n.s*	0,7	n.s*	109,7
Cl (1951/1959 keV) (c/s)	n.s*	n.s*	1,03	1,2	n.s*	16,5
Cl (6110 keV) (c/s)	n.s*	n.s*	1,57	0,2	n.s*	33,6
Cl (7414 keV) (c/s)	n.s*	n.s*	0,45	0,3	n.s*	7,5
Cl (7790 keV) (c/s)	n.s*	n.s*	0,27	n.s*	n.s*	5,2

* : n.s. = Non-Significatif

Tableau 7 : Comparaison des signaux utiles de PROMETHEE 6 et REGAIN.

La comparaison des signaux obtenus avec la diode placée en face avant des deux cellules permet de montrer le gain significatif apporté par la cellule REGAIN. Pour une durée d'acquisition réelle **trois fois plus courte** :

- le signal hydrogène du bruit de fond actif (cellule vide) est divisé par 7,5 ;
- un signal utile hydrogène est détecté, quelle que soit la matrice mesurée dans le domaine étudié ;
- le signal utile chlore est multiplié par un facteur allant de 15 à 20, selon l'énergie de la raie considérée ;
- le doublet du chlore à 786/788 keV est détecté, avec un fort niveau de signal, alors qu'il était complètement atténué dans PROMETHEE 6 ;
- le nombre total de coups dans le spectre est multiplié par 30.

Malgré le niveau de bruit de fond total beaucoup plus élevé, la cellule REGAIN permet d'obtenir un signal utile hydrogène, puisque le signal en présence de matrices est supérieur au signal de bruit de fond, ce qui n'était pas le cas dans PROMETHEE 6.

La détection des signaux utiles chlore et hydrogène est donc démontrée dans REGAIN. Il s'agit toutefois d'obtenir des signaux exploitables pour la méthode de correction, c'est à dire avec une variation monotone du signal en fonction de la quantité de matière, ainsi qu'avec une statistique de comptage suffisante.

2.3.3 Recherche du meilleur emplacement pour le détecteur gamma

Dans le but d'obtenir des signaux utiles pour la méthode de correction, des acquisitions ont été réalisées avec le générateur de neutrons utilisé en mode continu, en plaçant la diode germanium successivement en deux endroits : à travers la face avant puis à travers la porte de la cellule.

2.3.3.1 Diode placée en face avant de REGAIN

Le générateur de neutrons est réglé à 85 kV et 40 μ A. Dans ces conditions, les mesures effectuées donnent les résultats présentés dans le tableau 7.

Le calcul du temps actif corrigé à partir de la raie à 1332 keV du ^{60}Co permet d'obtenir les aires nettes corrigées présentées dans le tableau 6. La raie à 1332 keV est choisie pour le calcul préférentiellement à celle à 1173 keV, car cette dernière présente une interférence avec la raie à 1165 keV du chlore.

Seules les raies les plus intenses du chlore et la raie à 2223 keV provenant de l'hydrogène sont présentées dans le tableau 8.

La variation du signal chlore et hydrogène avec la densité obtenue avec la diode en face avant de REGAIN montre une variation semblable à celle observée dans PROMETHEE 6, à savoir une courbe en cloche, atteignant un maximum pour les densités intermédiaires de la gamme explorée (cf. figure 6). Cependant, cette variation en cloche ne se produit que pour les raies de plus faible énergie (doublets à 786/788 keV et 1951/1959 keV).

Pour les raies d'énergie plus élevées (6110 keV, 7414 keV et 7790 keV), la variation de l'aire nette corrigée en fonction de la densité est monotone. Ce comportement est dû à l'effet combiné de l'inhomogénéité de l'interrogation neutronique due à la matrice, et dans une moindre mesure à l'atténuation de la matrice vis-à-vis des rayonnements gamma (cf. § 2.2.4).

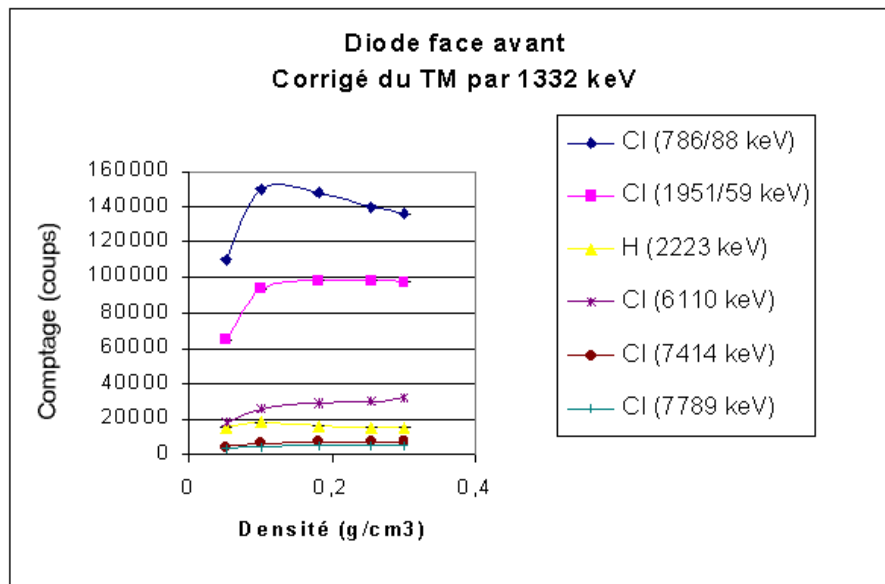


Figure 6 : Variation des signaux utiles chlore (corrigés du temps mort) avec la densité des matrices PVC dans le cas où la diode est placée en face avant de la cellule REGAIN.

Nature et densité de la matrice	CI 786/788 keV (coups)	CI 1951/1959 keV (coups)	H 2223 keV (coups)	CI 6110 keV (coups)	CI 7414 keV (coups)	CI 7790 keV (coups)	Total (coups)	Temps réel (s)	Temps actif corrigé (s)
Cellulose 0,07 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	39921	n.s*	n.s*	n.s*	66692115	900	725
Cellulose 0,144 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	78510	n.s*	n.s*	n.s*	61144581	900	738
Cellulose 0,28 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	134194	n.s*	n.s*	n.s*	54342112	900	765
Cellulose 0,377 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	147200	n.s*	n.s*	n.s*	50695868	900	775
PVC 0,05 (g/cm ³)	109990	64499	15046	17915	3817	3086	73479517	900	705
PVC 0,10 (g/cm ³)	149589	93029	18355	25592	6077	4395	74177207	900	702
PVC 0,18 (g/cm ³)	147889	98641	15457	29043	6847	4505	69558183	900	719
PVC 0,253 (g/cm ³)	140256	98690	14891	30222	6747	4645	67937283	900	721
PVC 0,30 (g/cm ³)	136582	97308	15189	31387	6826	5254	66699459	900	726
Mélange PVC/cellulose 0,08 (g/cm ³)	80999	49555	31103	13888	3153	2470	71187026	900	707
Mélange PVC/cellulose 0,135 (g/cm ³)	86434	51385	53447	14925	3414	2178	70279996	900	696
Mélange PVC/cellulose 0,22 (g/cm ³)	70052	45894	84621	12389	2924	2276	65284566	900	714
Mélange PVC/cellulose 0,30 (g/cm ³)	57961	37325	100112	10803	2939	1986	60235773	900	726
Mélange PVC/cellulose 0,10 (g/cm ³)	107921	66361	26521	18270	3941	3186	70917541	900	711
Mélange PVC/cellulose 0,14 (g/cm ³)	104043	63786	40543	18852	4506	3406	69439786	900	712

*n.s : Non-Significatif

Tableau 8 : Aires nettes corrigées du temps mort issues des mesures de spectrométrie gamma lorsque la diode est placée en face avant de la cellule REGAIN.

2.3.3.2 Diode placée à travers la porte de la cellule REGAIN

Les mêmes mesures qu'en face avant ont été réalisées avec la diode placée à travers la porte de REGAIN, dans le but d'obtenir une variation monotone du signal avec la densité. En effet, cette position à travers la porte est doublement plus favorable à l'obtention d'un signal utile. L'asymétrie de l'interrogation neutronique favorisant le côté de la matrice le plus proche du générateur permet d'une part d'augmenter le niveau de signal émis dans une zone de la matrice plus proche de la diode. D'autre part, l'effet d'atténuation de la matrice est moindre,

car la distance à parcourir pour les gamma à travers le fût en direction de la matrice est moindre. Ces effets sont illustrés dans le paragraphe suivant (§ 2.2.4).

La figure 7 montre la cellule REGAIN avec la diode placée au milieu de la porte.



Figure 7 : Cellule REGAIN avec la diode au milieu de la porte.

Le tableau 9 présente les comptages obtenus pour les différentes matrices dans cette géométrie de mesure.

Le niveau de signal utile est globalement plus élevé, jusqu'à 75 % de plus pour le doublet à 786/788 keV du chlore.

D'autre part, la variation des signaux utiles est croissante monotone dans cette géométrie de mesure. Cette croissance est plus importante pour les raies de plus faible énergie, puisque le rendement de détection de la diode germanium y est le plus élevé.

Le choix de placer la diode à travers la porte permet donc d'obtenir des signaux utilisables pour la méthode de correction.

Nature et densité de la matrice	Cl 786/788 keV (coups)	Cl 1951/1959 keV (coups)	H 2223 keV (coups)	Cl 6110 keV (coups)	Cl 7414 keV (coups)	Cl 7790 keV (coups)	Total (coups)	Temps réel (s)	Temps actif corrigé (s)
Cellulose 0,07 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	51011	n.s*	n.s*	n.s*	85294267	900	620
Cellulose 0,144 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	93226	n.s*	n.s*	n.s*	66692115	900	655
Cellulose 0,28 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	166888	n.s*	n.s*	n.s*	61144581	900	644
Cellulose 0,377 (g/cm ³)	n.s*	n.s*	199492	n.s*	n.s*	n.s*	54342112	900	644
PVC 0,05 (g/cm ³)	120923	72713	17403	19480	4851	3306	50695868	900	661
PVC 0,10 (g/cm ³)	172789	106210	21023	28910	7067	4942	73479517	900	622
PVC 0,18 (g/cm ³)	205569	133925	22798	38815	8979	6814	74177207	900	643
PVC 0,253 (g/cm ³)	224233	147817	24323	44644	9905	7727	69558183	900	588
PVC 0,30 (g/cm ³)	233433	159644	25415	48741	11493	8020	67937283	900	571
Mélange PVC/cellulose 0,08 (g/cm ³)	84525	50293	36237	13001	3470	2391	66699459	900	644
Mélange PVC/cellulose 0,135 (g/cm ³)	101375	59977	64281	16817	4641	3053	71187026	900	642
Mélange PVC/cellulose 0,22 (g/cm ³)	88366	56715	95538	15850	3431	3163	70279996	900	646
Mélange PVC/cellulose 0,30 (g/cm ³)	71309	46695	118826	13526	2991	2615	65284566	900	649
Mélange PVC/cellulose 0,10 (g/cm ³)	131712	78315	34662	22260	4813	3611	60235773	900	637
Mélange PVC/cellulose 0,14 (g/cm ³)	127102	78538	50527	22681	5609	3729	70917541	900	624

* : n.s = Non-Significatif

Tableau 9 : Aires nettes corrigées du temps mort issues des mesures de spectrométrie gamma avec la diode dans la porte de la cellule REGAIN.

La figure 8 représente la variation des signaux obtenus pour des matrices contenant uniquement du PVC en fonction de la densité dans le cas où la diode est placée à travers la porte de la cellule.

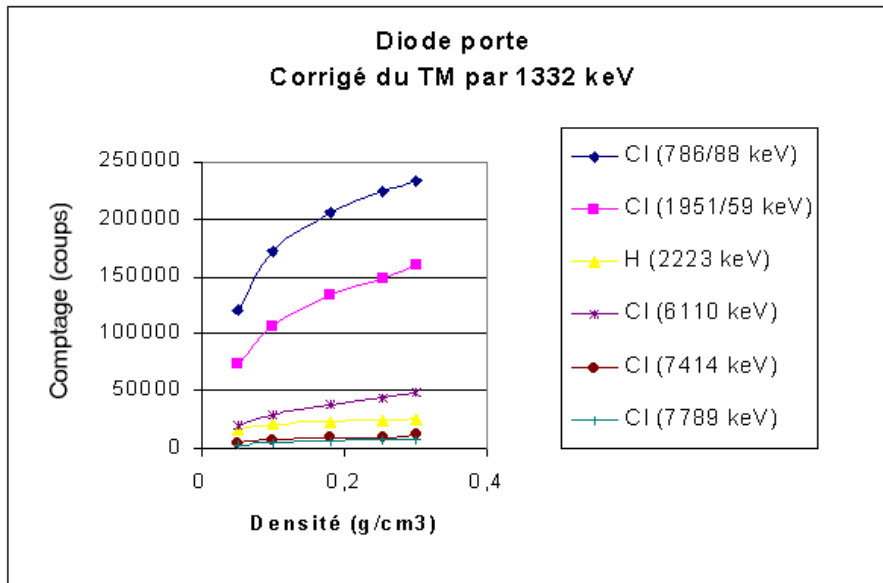


Figure 8 : Variation des signaux utiles chlore (corrigés du temps mort) avec la densité des matrices PVC dans le cas où la diode est placée à travers la porte de la cellule REGAIN.

La cellule REGAIN se révèle donc adaptée à la détection des signaux d'intérêt à un niveau suffisant pour la méthode de correction des effets de matrice, malgré l'utilisation du générateur de neutrons en mode continu. Le choix de positionner la diode à travers la porte de la cellule permet de bénéficier de la combinaison d'une interrogation plus importante de la partie du fût proche de la source de neutrons et du meilleur rendement de détection des gamma émis.

2.3.4 Illustration du comportement expérimental observé à l'aide de MCNP

Afin d'illustrer le comportement expérimental observé, des calculs MCNP ont été menés en deux étapes. Dans la première étape, le nombre de réactions de type (n, γ) sur les noyaux d'hydrogène et de chlore est calculé. Dans un second temps, le rendement de détection des rayonnements gamma issus de l'hydrogène et du chlore émis par la matrice sont calculés.

La matrice est discrétisée en 120 mailles de même volume (≈ 1 litre). Le maillage comporte 5 tranches horizontales, 8 secteurs angulaires et 3 tranches concentriques (figure 9), numérotées de 8 en 8 de 710 à 857.

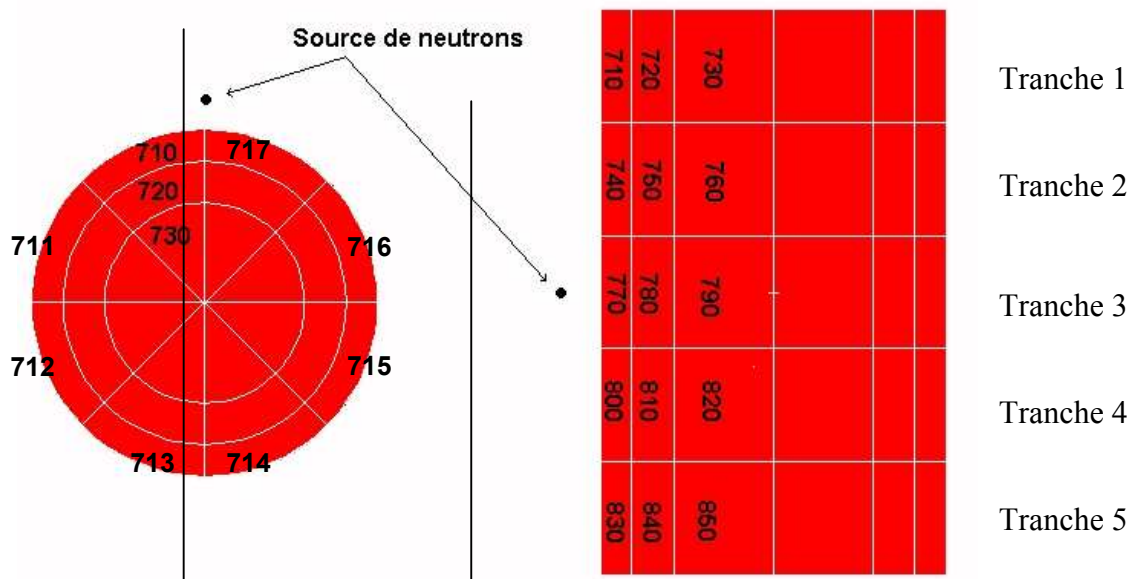


Figure 9 : Maillage de la matrice en 120 isovolumes.

2.3.4.1 Illustration des effets de matrice : inhomogénéité de la répartition du nombre de captures engendré dans la matrice

Le tableau 10 représente le nombre de captures (par cm^3 et par neutron émis) calculé par MCNP dans des matrices cellulose et PVC de densité $0,05 \text{ g/cm}^3$ et $0,30 \text{ g/cm}^3$. Les valeurs varient de 0 (violet foncé) à 100 % (rouge foncé), la normalisation s'effectuant pour chaque matrice par rapport à la maille dans laquelle le nombre de captures est le plus élevé.

On observe deux symétries : une symétrie gauche/droite par rapport un diamètre du colis situé dans l'axe du générateur de neutrons, une symétrie haut/bas par rapport au plan médian du fût. Le nombre de captures est maximum dans la tranche du milieu, dans les mailles les plus proches de la source de neutrons, puis diminue en fonction de la distance à la source de neutrons d'une part, et en fonction de l'épaisseur de matrice traversée d'autre part.

La répartition et la variation du nombre de captures par maille sont différentes selon que la matrice est composée de cellulose ou de PVC. Dans le cas de la cellulose, la répartition des captures est beaucoup plus homogène que dans le cas du PVC. De même, l'influence de la densité sur la répartition des captures est moins importante dans le cas de la cellulose.

L'interrogation de matrices homogènes révèle donc une répartition inhomogène du nombre de réactions de capture produites. Les zones les plus proches de la source de neutrons (mailles 710 et 711) ainsi que la périphérie des matrices sont mieux interrogées que les zones les plus éloignées et les plus en profondeur : les effets de matrice sont ainsi illustrés pour la matrice la plus favorable (cellulose de densité faible) et la plus défavorable (PVC de densité élevée).

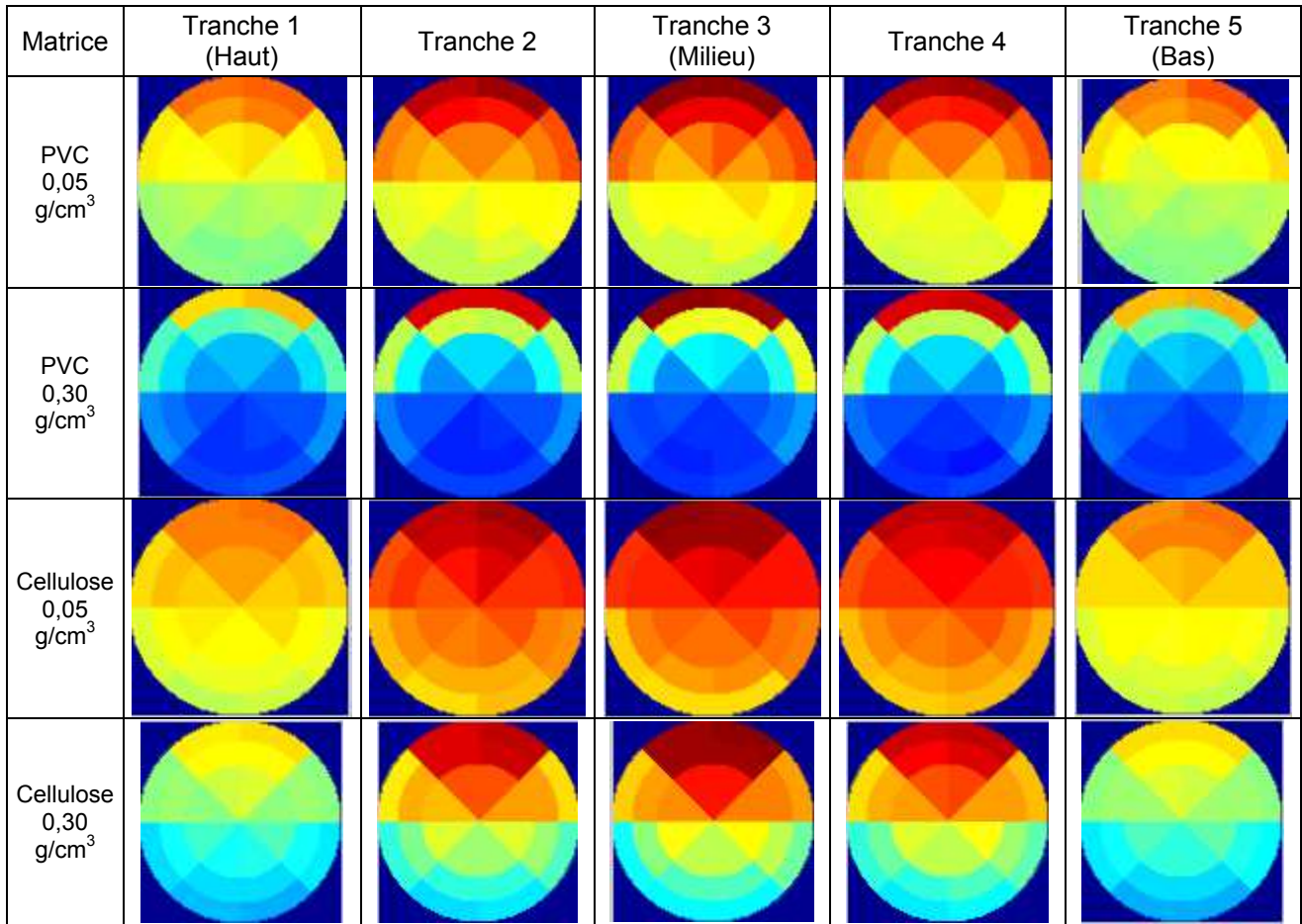


Tableau 10 : Répartition par maille du nombre de captures par neutron source émis et par cm³ calculé par MCNP dans différentes matrices.

La figure 10 représente le nombre de captures dans chaque maille (par cm³ et par neutron source émis) calculé par MCNP pour des matrices constituées uniquement de PVC et de densité comprise entre 0,05 et 0,30 g/cm³. Cette figure montre, comme on pouvait s'y attendre, que le nombre de capture total augmente avec la densité de la matrice, et que l'interrogation est de plus en plus importante en périphérie de la matrice. Alors qu'à faible densité ($d = 0,05 \text{ g/cm}^3$), toutes les mailles subissent entre $3,1 \cdot 10^{-7}$ et $6,3 \cdot 10^{-7}$ captures/neutron émis/cm³ (facteur 2), pour une densité de 0,30 g/cm³ ce même nombre varie entre $4,1 \cdot 10^{-7}$ et $2,9 \cdot 10^{-6}$ (facteur 7).

De même, la figure 11 représente le nombre de captures dans chaque maille (par cm³ et par neutron source émis) calculé par MCNP pour des matrices constituées uniquement de cellulose et de densité comprise entre 0,05 et 0,30 g/cm³. Le nombre total de captures augmente également avec la densité de la matrice et l'interrogation est également de plus en plus importante en périphérie de la matrice. A faible densité ($d = 0,05 \text{ g/cm}^3$), toutes les mailles subissent entre $3,4 \cdot 10^{-8}$ et $6,2 \cdot 10^{-8}$ captures/neutron émis/cm³ (facteur 2), pour une densité de 0,30 g/cm³ ce même nombre varie seulement entre $1,7 \cdot 10^{-7}$ et $5,8 \cdot 10^{-7}$ (facteur 3,4). Le nombre de captures dans une matrice cellulose est plus faible que dans une matrice PVC de densité égale, mais l'interrogation y est plus homogène.

Ainsi, bien que les matrices soient homogènes, l'interrogation est inhomogène, et le nombre de captures induites dépend de la position dans la matrice.

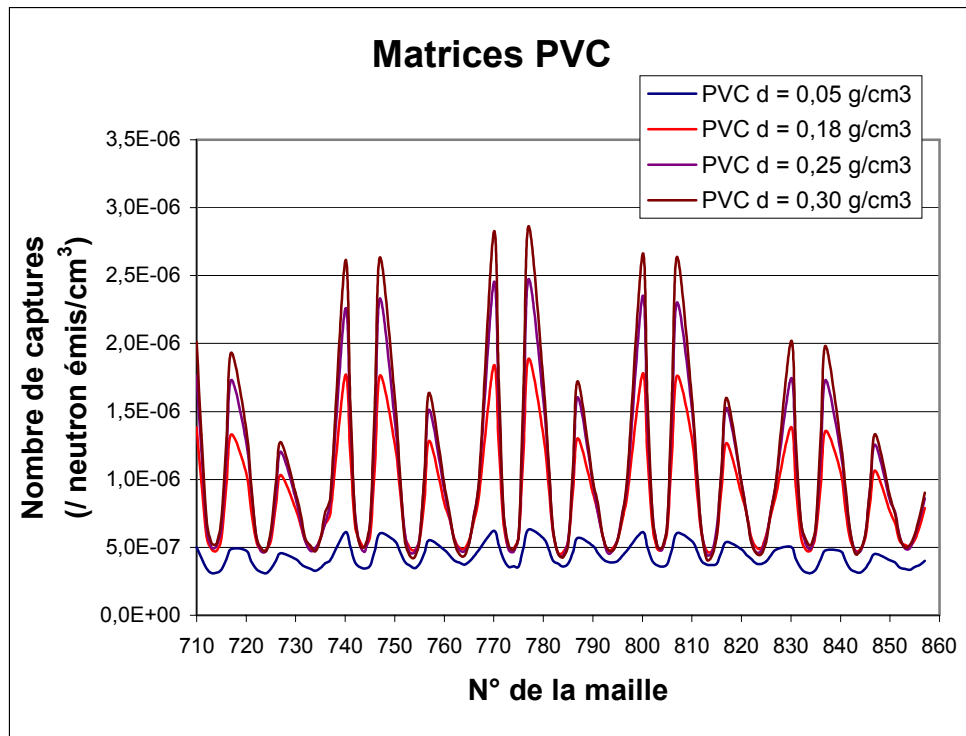


Figure 10 : Variation maille par maille du nombre de captures (/neutron émis /cm³) dans une matrice contenant du PVC, pour quatre densités différentes.

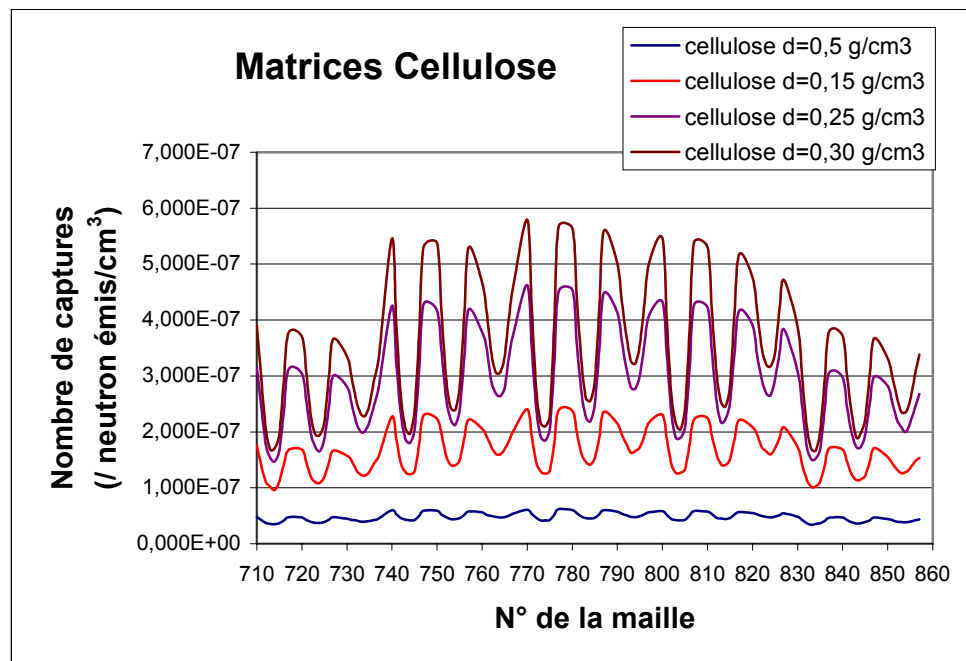


Figure 11 : Variation maille par maille du nombre de captures (/neutron émis /cm³) dans une matrice contenant de la cellulose, pour quatre densités différentes.

2.3.4.2 Illustration de la faible variation du rendement de détection en fonction de la densité de la matrice

La figure 12 présente la variation du rendement de détection du détecteur gamma vis-à-vis du rayonnement à 2223 keV de l'hydrogène. Celui-ci est calculé dans chacune des mailles d'une matrice constitué de PVC en fonction de la densité, avec la diode placée en face avant de la cellule REGAIN.

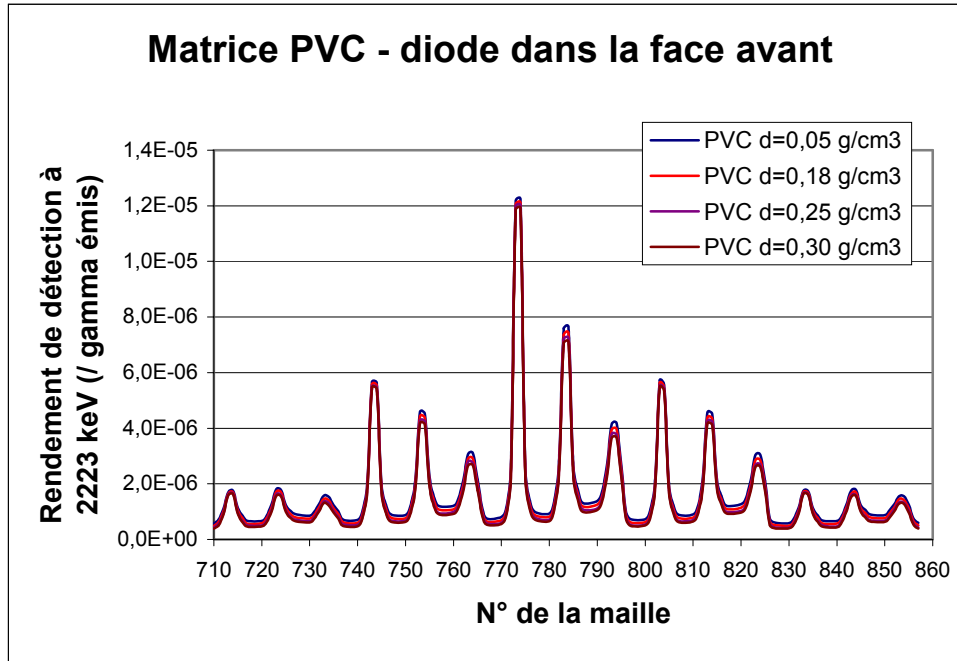


Figure 12 : Variation maille par maille du rendement de détection (/gamma émis /cm³) dans une matrice PVC avec la diode placée en face avant de REGAIN, pour quatre densités différentes.

Le rendement de détection pour chaque maille est peu sensible à la densité de la matrice. Le rendement de détection total diminue toutefois d'environ 14% au total entre 0,05 g/cm³ et 0,30 g/cm³ pour la raie à 2223 keV de l'hydrogène et de 10% pour la raie à 6110 keV du chlore. Il est le plus élevé pour les mailles situées face au détecteur gamma (mailles n°775 et 776), et décroît fortement avec l'épaisseur de matrice traversée et la distance de la maille au détecteur.

Le même calcul réalisé avec la diode placée à travers la porte de la cellule REGAIN montre également, comme on pouvait s'y attendre, que le rendement de détection maximum est obtenu pour les mailles situées le plus près de la diode germanium (mailles n° 773 et 774).

2.3.4.3 Combinaison des effets de matrice et du rendement de détection : estimation de la variation d'un paramètre relié au signal expérimental mesuré

La figure 13 représente la variation du paramètre P défini comme suit :

$$P = N_{(n, \gamma)} \cdot \rho_{\gamma} \cdot I_{\gamma}$$

Avec :

$N_{(n, \gamma)}$: nombre de réaction de captures (/neutron émis /cm³)

ρ_{γ} : rendement de détection à l'énergie considérée (%)

I_γ : intensité d'émission du rayonnement (%)

Ce paramètre P varie de la même manière que le signal expérimental. Dans le cas où le détecteur est placé dans la face avant de la cellule REGAIN, le maximum de P est atteint dans les mailles n°774 et 775, les plus proches du détecteur. D'autre part, le signal total, provenant de l'ensemble de la matrice, décroît quand la densité augmente.

De même, la figure 14 présente la variation de P pour un détecteur placé dans la porte de REGAIN. Le maximum de signal est alors atteint pour les mailles à proximité de la diode (mailles 775 et 776). Dans ce cas, le signal total augmente avec la densité de la matrice.

La composition des effets de matrice (nombre de captures) et du rendement de détection a pour conséquence que le signal mesuré provient essentiellement de la périphérie de la matrice dans les zones les plus proches du détecteur. Cela conduit à favoriser la détection des gamma produits dans les zones les plus proches de la source neutronique, ce qui a été fait expérimentalement en plaçant la diode à travers la porte de REGAIN.

Il conviendrait, pour améliorer encore le signal mesuré, de placer la diode dans la face arrière de la cellule REGAIN, plus près du générateur de neutrons, en vérifiant que le flux de neutrons qu'elle reçoit ne la détériore pas trop rapidement.

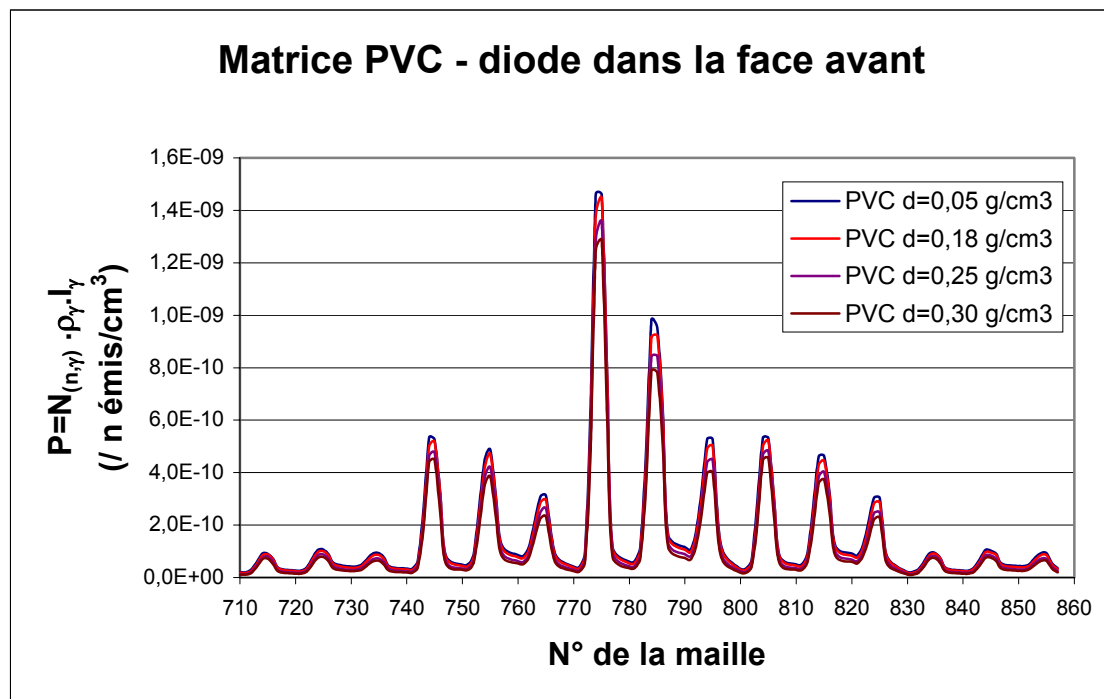


Figure 13 : Variation maille par maille du paramètre P pour un détecteur placé en face avant de la cellule REGAIN.

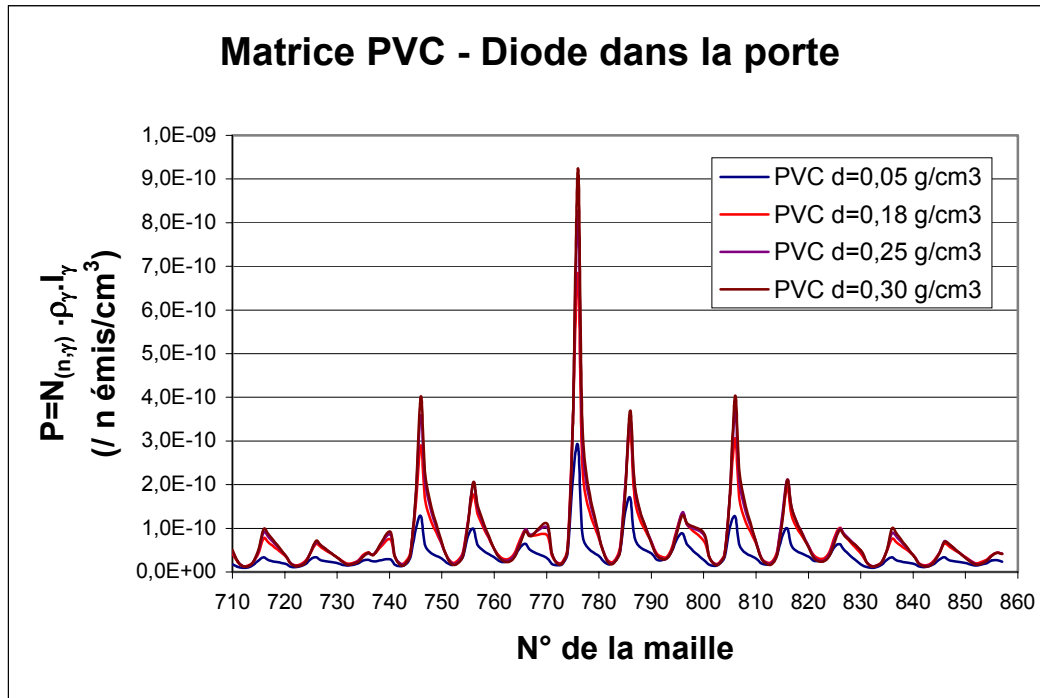


Figure 14 : Variation maille par maille du paramètre P pour un détecteur placé dans la porte de la cellule REGAIN.

2.4 Conclusion de l'étude expérimentale sur REGAIN

La cellule REGAIN, dimensionnée pour l'étude des rayonnements gamma de capture provenant de fûts de 118 litres donne satisfaction pour l'application visée dans le cadre de cette thèse. L'hydrogène des matrices est détecté, et la variation des signaux d'intérêt est croissante monotone dans le cas où la diode est placée à travers la porte de la cellule de mesure.

Cependant, la mise en œuvre de la méthode de mesure interpulse utilisée auprès de la cellule PROMETHEE 6 s'est heurtée à la difficulté de la gestion du temps mort variable avec le temps. Cette difficulté est liée :

- à la géométrie de mesure. En plaçant la diode germanium au plus près du fût, le nombre d'évènements à gérer par la chaîne de spectrométrie augmente drastiquement ;
- à l'utilisation du générateur de neutrons en mode impulsionnel qui produit une très grande quantité de neutrons sur une courte durée, ce qui peut entraîner la saturation de l'électronique de mesure pendant l'impulsion.

Toutefois, l'utilisation du générateur de neutrons en mode continu, bien que produisant un bruit de fond élevé, a permis d'obtenir des signaux utilisables pour la mise en œuvre de la méthode de correction envisagée.

La compréhension des phénomènes mis en jeu dans la détection des rayonnements gamma de capture émis par les constituants de la matrice a été facilitée par l'emploi du calcul MCNP afin de visualiser la contribution des effets de matrice sur le flux des neutrons interrogateurs, puis sur le transport des gamma produits.

3 Définition d'une méthode de correction des effets de matrice

3.1 Utilisation d'un rapport de signaux comme paramètre de la correction

La mesure des signaux utiles issus de l'hydrogène et du chlore auprès de la cellule REGAIN permet de définir le fonctionnement pratique de la méthode de correction des effets de matrice envisagée au chapitre 2. Le principe en est le suivant :

- 1) déterminer si la matrice mesurée contient du PVC, par la mise en évidence d'un signal utile significatif provenant du chlore ;
- 2) dans le cas où elle en contient, en quantifier la proportion relative ;
- 3) choisir le coefficient d'étalonnage corrigé à appliquer pour la proportion de PVC déterminée afin d'interpréter de façon plus juste le signal neutronique issu de la mesure par I.N.A.

Ainsi, l'indicateur retenu pour la détermination de la teneur en PVC de la matrice mesurée est le rapport S_{Cl}/S_H d'un signal net provenant du chlore et du signal hydrogène à 2223 keV. Le signal chlore est en effet l'indicateur de la présence de PVC et le signal hydrogène signe la présence de la cellulose. L'étape suivante consiste donc à choisir la raie du chlore permettant d'optimiser l'évaluation de la teneur en chlore de la matrice et par conséquent le coefficient de correction.

Les mesures réalisées auprès de REGAIN permettent de tracer la variation du rapport S_{Cl}/S_H avec la densité et la teneur en PVC des matrices. Les raies d'intérêt pour la méthode restent les raies d'intensité les plus élevées, à savoir 6110 keV, 786 keV, 1951 keV, 7414 keV et 7790 keV. Le doublet à 786/788 keV n'est cependant pas résolu.

3.1.1 Calcul des Limites de Détection

Le principe général du calcul des limites de détection est présenté en annexe 2.

Les Limites de Détection (en coups) associées aux différentes raies du chlore sont présentées dans le tableau 11. Les mesures sont effectuées en continu pendant une durée de 900 s. Les résultats sont toutefois à prendre avec précaution, car la méthode d'évaluation des LD présentée suppose un bruit de fond de référence constant. Dans le cas de l'interrogation neutronique, les effets de matrice influent sur le niveau du fond Compton. La surface brute à prendre en compte pour le calcul des LD diffère donc d'une matrice à l'autre.

Le tableau 11 reporte les niveaux de signal mesurés dans REGAIN en présence d'une matrice contenant 2,95 kg de PVC (soit 1,1 kg de chlore et 0,16 kg d'hydrogène environ) et 6,5 kg de cellulose (soit 0,42 kg d'hydrogène environ), de densité 0,08 g/cm³. Le temps de mesure est égal à celui des mesures qui ont permis d'estimer les LD.

La comparaison des tableaux 11 et 12 indique que les LD estimées sont suffisamment faibles pour encourager la détection d'une faible proportion de chlore dans une matrice de déchets technologiques.

Energie	786/788 keV	1951/1959 keV	6111 keV	7414 keV	7790 keV
Aire brute N =F (coups)					
Cellulose d = 0,07 g/cm ³	140823	53157	6303	2912	1017
Cellulose d = 0,144 g/cm ³	149488	63122	6866	3229	1034
Cellulose d = 0,28 g/cm ³	150319	74992	6089	2698	945
Cellulose d = 0,38 g/cm ³	150753	79198	5806	2511	953
$\sigma_{A=0}$ (coups)					
Cellulose d = 0,07 g/cm ³	531	326	112	76	45
Cellulose d = 0,144 g/cm ³	547	355	117	80	45
Cellulose d = 0,28 g/cm ³	548	387	110	73	43
Cellulose d = 0,38 g/cm ³	549	398	108	71	44
LD (coups)					
Cellulose d = 0,07 g/cm ³	2127	1308	453	309	184
Cellulose d = 0,144 g/cm ³	2191	1425	473	325	186
Cellulose d = 0,28 g/cm ³	2197	1553	445	298	178
Cellulose d = 0,38 g/cm ³	2200	1596	435	287	179

Tableau 11 : Limites de Détection du chlore (en coups) dans des matrices constituées entièrement de cellulose.

Energie (keV)	786/788	1951/1959	6111	7414	7790
Comptage (coups)	84525	50293	13001	3470	2391

Tableau 12 : Valeurs des signaux utiles (coups) pour la matrice cellulose mesurée dans REGAIN contenant la plus faible quantité de PVC.

3.1.2 Construction d'abaques expérimentaux

L'étape suivant la détection de chlore dans une matrice de déchets technologiques ($A > LD$ à un niveau de confiance de 97,5 %) consiste à quantifier sa teneur en PVC.

Les résultats du tableau 13 présentent la variation de la proportion du rapport S_{Cl} / S_H en fonction de la teneur en PVC. Celle-ci est considérée dans cette approche comme étant linéaire (figure 15).

PVC (%)	Cellulose (%)	Densité (g/cm ³)	S_{Cl} (786/788 keV) / S_H	S_{Cl} (1951/1959 keV) / S_H	S_{Cl} (6110 keV) / S_H	S_{Cl} (7414 keV) / S_H	S_{Cl} (7790 keV) / S_H
100	0	0,05	8,45	5,08	1,36	0,34	0,23
100	0	0,1	9,64	5,92	1,61	0,39	0,28
100	0	0,18	10,43	6,80	1,97	0,46	0,35
100	0	0,253	10,56	6,96	2,10	0,47	0,36
100	0	0,3	10,46	7,15	2,18	0,51	0,36
34,13	65,87	0,14	0,14	2,68	1,66	0,48	0,12
31,2	68,8	0,08	0,08	2,55	1,52	0,39	0,10
18,44	81,16	0,136	0,14	1,66	0,98	0,27	0,08
16,1	83,9	0,3	0,30	1,54	0,99	0,27	0,06
11,3	88,65	0,22	0,22	0,96	0,61	0,17	0,04
8,33	91,13	0,3	0,30	0,62	0,40	0,12	0,03

Tableau 13 : Rapport des signaux chlore et hydrogène mesurés avec la diode dans la porte.

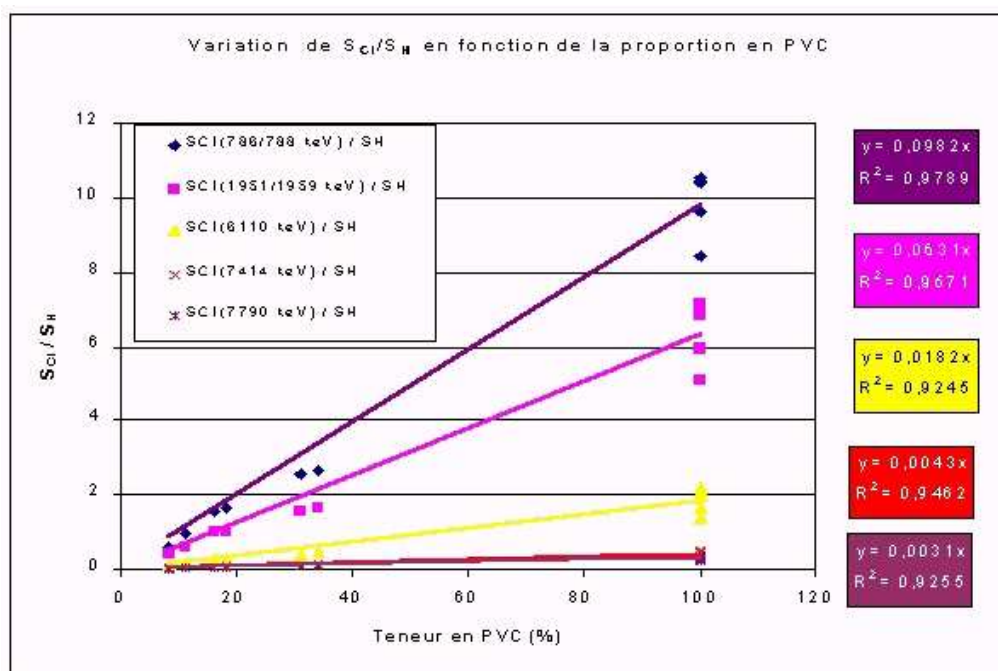


Figure 15 : Variation de S_{Cl}/S_H en fonction de la teneur en PVC.

Le rapport S_{Cl}/S_H augmente avec la proportion en PVC dans la matrice. La dynamique la plus importante est obtenue pour le doublet à 786/788 keV. Cela en fait donc un bon candidat pour la méthode de correction.

D'autre part, on observe une grande dispersion du rapport S_{Cl}/S_H avec la densité lorsque les matrices contiennent uniquement du PVC. Ce rapport augmente de façon surprenante avec la densité de la matrice. En effet, de façon théorique, le rapport des signaux reste constant avec la densité, puisque les quantités relatives de chlore et d'hydrogène restent constantes dans des matrices de composition identiques mais de densités distinctes. En effet, l'équation donnant le signal gamma utile en fonction des différents paramètres (équation 3 du §1.1.4 du chapitre 2), permet d'exprimer le rapport théorique attendu :

$$\frac{S_{Cl}}{S_H} = \frac{n_{Cl} \cdot \left(\int \sigma_{Cl}(E_n) \Phi_n(E_n) dE_n \right) \cdot \rho_{\gamma Cl} \cdot I_{\gamma Cl} \cdot t}{n_H \cdot \left(\int \sigma_H(E_n) \Phi_n(E_n) dE_n \right) \cdot \rho_{\gamma H} \cdot I_{\gamma H} \cdot t}$$

Avec :

S : signal utile (coups),

n : nombre d'atomes,

$\sigma(E_n)$: section efficace de capture du chlore en fonction de l'énergie E_n des neutrons (cm^2),

ρ_{γ} : rendement de détection gamma (%),

I_{γ} : intensité d'émission de la raie gamma (%),

t : durée d'irradiation-mesure (s).

Les indices Cl et H se rapportent respectivement au chlore et à l'hydrogène.

Dans l'hypothèse d'un flux uniquement thermique $\Phi_{n_{th}}$, la relation devient, avec $I_{\gamma} = 100\%$ pour la raie de l'hydrogène :

$$\frac{S_{Cl}}{S_H} = \frac{n_{Cl} \cdot \sigma_{Cl}(E_{th}) \Phi_n(E_{th}) \cdot \rho_{\gamma Cl} \cdot I_{\gamma Cl}}{n_H \cdot \sigma_H(E_{th}) \Phi_n(E_{th}) \cdot \rho_{\gamma H}}$$

Dans cette équation, les seuls paramètres variant avec la densité sont les rendements de détection. Etant donnée l'énergie élevée des rayonnements de capture, leur variation reste cependant de faible amplitude sur la gamme de densité considérée, inférieure à $0,4 \text{ g/cm}^3$ (cf. figure 12). Le rapport des signaux est donc théoriquement à peu près constant avec la densité. Les causes de la dispersion constatée expérimentalement peuvent être nombreuses, mais semblent plutôt à chercher dans la variation des conditions de mesure d'un colis à un autre :

- variation dans l'environnement de la mesure ;
- variation du flux neutronique dû à la présence même de la matrice, et donc du niveau de bruit de fond gamma ;
- variation dans l'homogénéité des matrices, provenant de la manipulation des fûts, voire même de leur constitution, puisque les morceaux de PVC ne sont pas identiques pour les matrices PVC de densité différentes ;

3.1.3 Construction d'abaques calculés

L'ensemble des points expérimentaux permet de définir les variations du rapport choisi S_{Cl}/S_H comme indicateur de la teneur en PVC de la matrice.

Le but de ces calculs est le soutien à l'expérimentation car le nombre de matrices-étalons est limité. Toute la gamme des teneurs et des densités ne peut être couverte expérimentalement de manière exhaustive. L'objectif est d'obtenir un schéma de calcul validé, qui corrobore les points expérimentaux, dans le but de disposer d'un outil pour la mise en œuvre de la méthode de correction.

Pour l'étude présentée dans ce paragraphe, la méthode retenue consiste en un calcul en deux étapes. Dans un premier temps, la fluence gamma est calculé en mode neutron-photon en un point situé juste devant le capot de la diode germanium à l'aide d'un « tally » F5, communément appelé « détecteur point ». Dans un second temps, la fluence obtenue avec le résultat F5 est utilisée comme source secondaire pour effectuer le transport des photons

jusqu'au volume de détection, et ainsi obtenir le dépôt d'énergie dans le germanium, pouvant être comparé au spectre expérimental. Cette méthode de calcul en deux étapes présente l'avantage d'assurer la convergence du calcul en un temps acceptable (5000 minutes).

La figure 16 présente la variation de S_{Cl}/S_H obtenue par le calcul. Le rapport des signaux calculés varie peu en fonction de la densité de la matrice. Les courbes calculées sont en effet presque confondues pour les trois densités entrées dans le code : 0,1 g/cm³, 0,2 g/cm³ et 0,3 g/cm³. Le calcul indique une faible dépendance du rapport des signaux Cl et H avec la densité des matrices dans le domaine étudié, sans commune mesure avec la variation observée expérimentalement.

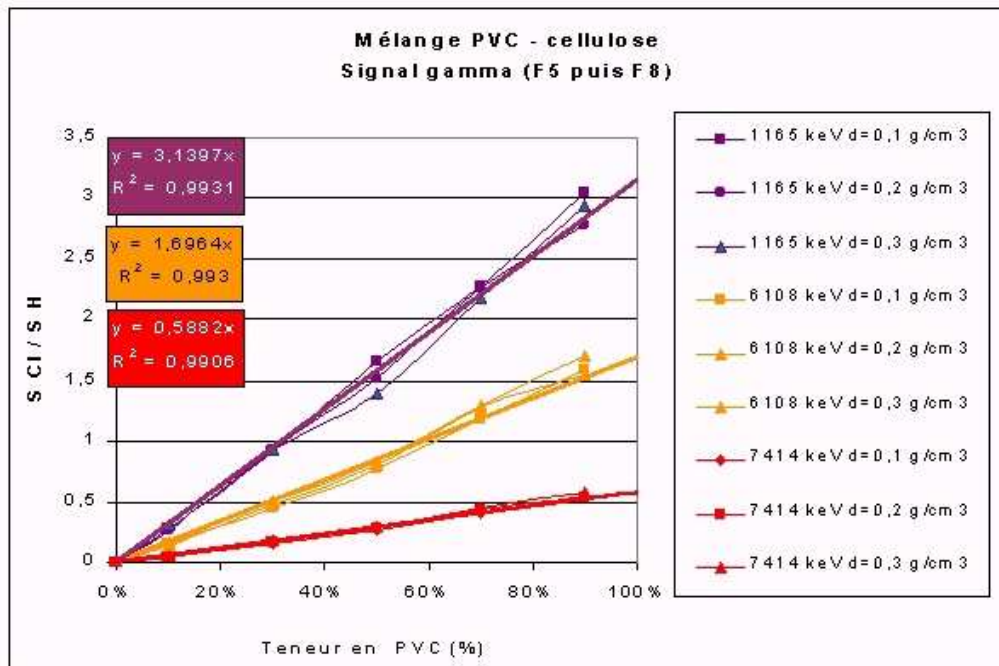


Figure 16 : Variation du rapport des signaux calculés par MCNP (F5 puis F8)

Cependant, les variations obtenues, bien qu'elles présentent le même comportement global, ne permettent pas de retrouver les valeurs des rapports S_{Cl}/S_H expérimentaux.

Le schéma de calcul n'a en effet pas pu être validé en absolu. Cela peut provenir de nombreuses hypothèses de modélisation (homogénéité des matrices, composition réelle des matrices, absence de certains matériaux dans la modélisation par exemple), ainsi que du modèle de calcul en deux étapes, qui nécessite une hypothèse restrictive sur le flux photonique entrant dans le détecteur. Les résultats présentés sur la figure 18 ont été obtenus en introduisant le flux photonique en incidence normale sur la face avant du détecteur, ce qui est une hypothèse restrictive. Il a été montré que l'hypothèse réalisée sur la forme du flux de photons a une incidence sur le résultat du calcul, selon que les photons sont émis perpendiculairement à la fenêtre d'entrée du détecteur, ou selon une autre géométrie (cône d'émission, émission isotrope) [36]. L'hypothèse d'un flux de photons perpendiculaire est utilisée avec succès dans le cas d'un détecteur placé à une grande distance de la source des rayonnements gamma. Dans la cellule REGAIN, le détecteur étant placé à faible distance des sources de rayonnements gamma, cette hypothèse simple n'est pas réaliste. Les calculs réalisés ne peuvent donc que permettre d'obtenir la tendance générale de la variation de S_{Cl}/S_H .

D'autre part, la raie à 786 keV du chlore n'apparaît pas dans les spectres calculés : cette raie de capture parmi les plus intenses émises par le chlore n'est pas tabulée dans les bibliothèques de données MCNP. Cette constatation entraîne un doute sur la validité des bibliothèques fournies dans la version 4c de MCNP concernant les raies de capture du chlore. Une validation du code par comparaison avec des expérimentations réalisées dans des conditions plus simples et avec des matériaux dont la teneur en chlore est parfaitement connue ainsi qu'avec des données internationalement reconnues serait nécessaire afin de construire une bibliothèque avec un grand niveau de confiance.

En l'absence de ces données implémentées, il n'est à l'heure actuelle pas possible de s'appuyer sur le code MCNP pour extrapoler en mode combiné neutron/photon les points expérimentaux à d'autres teneurs en PVC et d'autres densités. En conséquence, la méthode de correction proposée est basée sur les résultats expérimentaux obtenus pour la spectrométrie gamma auprès de la cellule REGAIN.

3.1.4 Influence de la densité de la matrice

Jusqu'à présent dans cette étude, les coefficients S_{Cl}/S_H sont déterminés indépendamment de la densité de la matrice. Les calculs MCNP montrent également que la densité n'est pas un paramètre très influant sur la valeur des coefficients S_{Cl}/S_H . Cependant, les mesures réalisées montrent quant à elles une variation du paramètre S_{Cl}/S_H expérimental avec la densité dans le cas d'une matrice composée uniquement de PVC. Le jeu de matrice passé en revue lors de l'étude expérimentale ne permet pas de se prononcer sur l'existence d'une telle variation avec la densité dans le cas d'autres compositions de matrices chlorées.

La démarche retenue consiste alors à prendre en compte la variation du coefficient S_{Cl}/S_H avec la densité dans l'incertitude globale sur ce coefficient (cf. §4.1.2). Il n'est donc pas *a priori* nécessaire de savoir déterminer la densité apparente d'une matrice pour obtenir la proportion de PVC.

La connaissance de la densité est néanmoins indispensable pour la détermination du coefficient d'étalonnage corrigé K_{corr} .

Il est à noter que la densité est un paramètre facilement accessible par simple pesée dans le cas des fûts mesurés dans PROMETHEE 6. Elle peut être définie comme le simple rapport de la masse de la matrice rapportée au volume intérieur du fût. L'hypothèse émise est que le fût est totalement rempli¹.

3.2 Evaluation du coefficient d'étalonnage corrigé

Le coefficient d'étalonnage à appliquer à la mesure par I.N.A. est obtenu par modélisation MCNP. Le calcul des coefficients d'étalonnage est effectué pour une masse de 10 g de ^{239}Pu répartie de manière homogène dans la matrice. Les compositions des matrices entrées dans le code sont identiques à celles utilisées pour le calcul du flux photonique.

A partir du nombre de réactions $^3\text{He}(n,p)\alpha$ créées dans les détecteurs de neutrons des blocs de détection de PROMETHEE 6, calculé en utilisant un « tally » de type F4 modifié, le

¹ Il pourrait également être envisagé d'obtenir par imagerie de transmission la densité du fût. La mesure par radiographie aurait de plus l'avantage d'indiquer le niveau de remplissage du colis. Cela ouvrirait la possibilité de prendre en compte le niveau de remplissage de la matrice dans la méthode de correction. Une autre voie consisterait à utiliser la variation des signaux gamma avec la densité des matrices pour obtenir un indicateur de la densité.

coefficient d'étalonnage K_{et} , reliant le signal utile neutronique à la masse de contaminant, est déterminé par la relation :

$$K_{et} = \frac{N_{(n,p)}}{(t_2 - t_1) M_{Pu}} \cdot \frac{E_n}{f} \cdot C$$

Avec :

K_{et} : coefficient d'étalonnage I.N.A. (c/s)/mg_{Pueq},

$N_{(n,p)}$: nombre de réaction (n,p) sur l'hélium des compteurs (/neutron émis),

$t_2 - t_1$: durée d'acquisition sur une période de tir (s),

E_n/f : nombre de neutrons émis par période de tir (n émis),

C : coefficient tenant compte de la perte de comptage dans l'électronique (0,94 dans le cas des amplificateurs de charge de PROMETHEE 6).

Les résultats obtenus pour les différentes compositions des matrices étudiées et pour une gamme de densité variant de 0,1 à 0,4 g/cm³ sont présentés sur la figure 17.

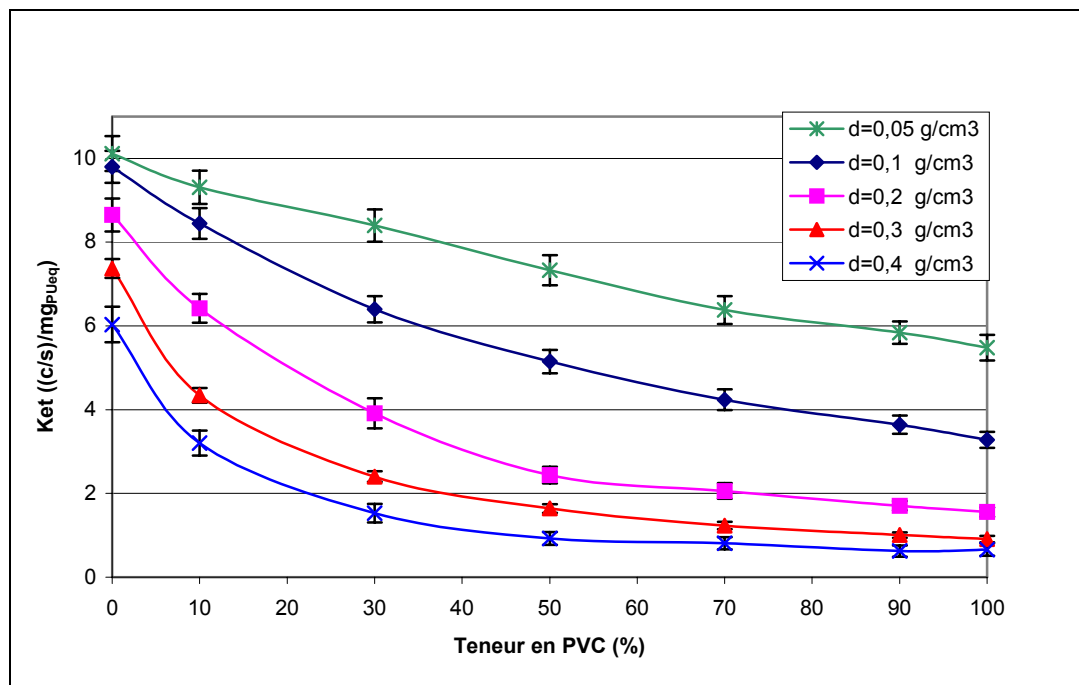


Figure 17 : Variation du coefficient d'étalonnage I.N.A. K_{et} calculé par MCNP avec la teneur en PVC de la matrice.

Le coefficient d'étalonnage ainsi calculé varie d'un facteur 15 entre une matrice de densité 0,05 g/cm³ constituée uniquement de cellulose et une matrice de densité 0,4 g/cm³ constituée entièrement de PVC. Cela confirme l'intérêt d'une méthode de correction.

La densité étant supposée connue, le gain théorique sur le coefficient corrigé peut s'élever à un facteur 9 pour une densité de 0,4 g/cm³ entre une matrice contenant uniquement de la cellulose et une matrice constituée uniquement de PVC.

La méthode de correction repose alors sur la lecture de l'abaque présenté sur la figure 17. La valeur de la proportion en PVC obtenue par spectrométrie gamma permet, pour la densité

apparente de la matrice évaluée, de choisir le coefficient d'étalonnage corrigé lui correspondant.

La variation du coefficient d'étalonnage obtenue montre que la méthode de correction devrait apporter le gain maximum pour les faibles proportions de PVC. C'est en effet pour ces teneurs en PVC qu'une petite variation a le plus d'incidence sur le coefficient K_{et} . Ce phénomène s'accroît avec l'augmentation de la densité de la matrice.

D'autre part, quand la densité de la matrice augmente, la variation du coefficient K_{et} avec la proportion en PVC devient faible pour des teneurs en PVC supérieures à 50 %. Cette saturation provient de l'augmentation de l'absorption de la matrice avec la teneur en chlore.

La variation du coefficient d'étalonnage en fonction de la teneur en PVC est déterminée par régression selon la méthode des moindres carrés avec la relation suivante, choisie pour obtenir une même loi de variation pour toutes les courbes de l'abaque calculé :

$$K_{et} = K_{min} + A_1 \exp(-a_1 \%PVC)$$

Avec :

K_{et} : coefficient d'étalonnage (c/s)/mg_{Pueq}

%PVC : teneur en PVC de la matrice (%)

K_{min} , A_1 et a_1 : coefficients à déterminer.

Le tableau 14 présente les résultats des régressions obtenues à l'aide du logiciel WinReg [43]. Celui-ci permet d'obtenir les valeurs des coefficients de régression ainsi que l'écart-type associé.

Densité (g/cm ³)	K_{min}	$\sigma(K_{min})$	A_1	$\sigma(A_1)$	a_1	$\sigma(a_1)$
0,05	1,522	1,308	8,548	1,268	0,008	0,002
0,1	2,294	0,147	7,488	0,136	0,020	0,001
0,2	1,404	0,085	7,243	0,106	0,036	0,002
0,3	1,058	0,137	6,202	0,237	0,056	0,006
0,4	0,720	0,070	5,267	0,139	0,070	0,005

Tableau 14 : Paramètres de la fonction d'interpolation pour les K_{et} à différentes densités.

La variation de ces paramètres avec la densité suit une loi linéaire, comme l'indique la figure 18. L'incertitude élevée sur les coefficients K_{min} et A_1 pour la matrice de faible densité sont liés à la forte corrélation entre ces deux paramètres. Une variation du coefficient constant K_{min} entraîne une variation inverse de la pente de l'exponentielle. Cela est d'autant plus sensible que la pente de l'exponentielle est faible.

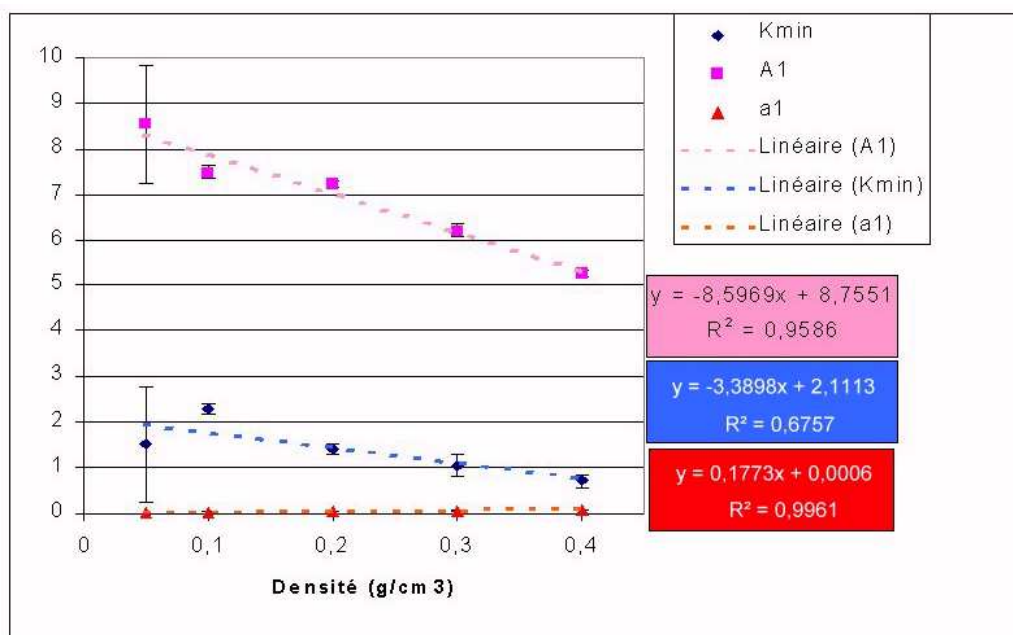


Figure 18 : Variation des coefficients de régression avec la densité de la matrice.

En reportant les lois de variation des paramètres de la régression dans l'équation donnant le K_{et} , une même loi de variation du coefficient d'étalonnage est obtenue pour tout le domaine exploré, à la fois en teneur en PVC (%PVC entre 0 et 100%) et en densité ($d < 0,4 \text{ g/cm}^3$) :

$$K_{et}(\%PVC) = 2,1113 - 3,3898.d + (8,7551 - 8,5969.d) \cdot \exp(-(0,0006 + 0,1773.d) \cdot \%PVC)$$

Avec :

K_{et} : coefficient d'étalonnage I.N.A. (c/s)/mgPu_{eq}

%PVC : teneur en PVC de la matrice (%)

d : densité de la matrice (g/cm³)

L'incertitude sur la valeur de K_{et} doit être évaluée en tenant compte de la propagation des erreurs de la mesure de spectrométrie gamma vers la détermination du rapport S_{Cl}/S_H puis la détermination de la teneur en PVC.

4 Evaluation des performances de la méthode de correction proposée

La méthode de correction proposée permet d'utiliser le rapport de signaux gamma obtenus lors d'une mesure sur une matrice pour remonter en premier lieu à sa proportion en PVC, puis de cette proportion au coefficient d'étalonnage I.N.A.

L'objet de ce paragraphe est d'évaluer le gain apporté par cette méthode sur la masse de contaminant annoncée au final.

Le premier facteur de gain provient de l'utilisation même de la spectrométrie gamma. Cette technique de mesure permet en effet de discriminer les matrices chlorées des matrices non-chlorées. Cette dichotomie autorise à considérer les matrices non-chlorées comme étant des matrices hydrogénées et à attribuer au colis concerné le coefficient d'étalonnage correspondant. Le gain apporté par la méthode sur le facteur de correction est dans ce cas

maximum, puisqu'en l'absence de cette information, il est nécessaire de traiter la matrice dans le cas le plus pénalisant, à savoir une matrice uniquement PVC.

Dans le cas de matrices contenant un mélange de cellulose et de PVC, le choix du coefficient de correction à appliquer est plus délicat. Le recours aux abaques est nécessaire, afin de faire correspondre le rapport des signaux chlore et hydrogène mesuré au coefficient I.N.A. par le biais de la proportion de PVC déterminée. Il est donc nécessaire de déterminer l'incertitude cumulée qui pèse sur le coefficient déterminé à l'aide de la méthode de correction.

4.1 Propagation d'erreurs

Les différents termes d'incertitude à prendre en compte sont :

- l'incertitude statistique des mesures de spectrométrie gamma ;
- la dispersion des paramètres S_{Cl}/S_H en fonction de la densité ;
- l'incertitude sur les différents paramètres de régression.

4.1.1 Incertitude statistique

L'incertitude statistique est liée aux aires nettes des pics H et Cl d'intérêt. Elle conduit à une incertitude sur le rapport S_{Cl}/S_H et se propage à la détermination de la teneur en PVC et au choix du coefficient K_{corr} .

4.1.1.1 Incertitude de mesure sur le quotient S_{Cl}/S_H

L'incertitude σ_{S_{Cl}/S_H} sur le quotient de deux comptages S_{Cl} et S_H s'exprime de la façon suivante, en admettant un comportement poissonien [45]:

$$\sigma_{S_{Cl}/S_H} = \left(\frac{S_{Cl}}{S_H} \right) \sqrt{\left(\frac{\sigma_{S_{Cl}}}{S_{Cl}} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{S_H}}{S_H} \right)^2}$$

D'autre part, on a la relation :

$$A = N - F$$

A : aire nette (coups)

N : comptage total (coups)

F : comptage dans le bruit de fond (coups)

$$\sigma_A^2 = \sigma_N^2 + \sigma_F^2 = N + F = A + 2.F$$

D'où :

$$\sigma_{S_{Cl}/S_H} = \frac{S_{Cl}}{S_H} \sqrt{\frac{S_{Cl} + 2F_{Cl}}{S_{Cl}^2} + \frac{S_H + 2F_H}{S_H^2}}$$

Le tableau 15 récapitule les résultats trouvés pour les incertitudes du rapport S_{Cl}/S_H pour les différentes énergies mesurées.

Nature et densité de la matrice	$\sigma_{S_{Cl} (786/788 \text{ keV}) / S_H}$	$\sigma_{S_{Cl} (1951/1959 \text{ keV}) / S_H}$	$\sigma_{S_{Cl} (6110 \text{ keV}) / S_H}$	$\sigma_{S_{Cl} (7414 \text{ keV}) / S_H}$	$\sigma_{S_{Cl} (7790 \text{ keV}) / S_H}$
PVC d = 0,05 g/cm ³	2,70	1,38	1,80	1,62	1,27
PVC d = 0,10 g/cm ³	2,65	1,34	2,03	1,59	1,22
PVC d = 0,18 g/cm ³	2,75	1,29	2,16	1,60	1,15
PVC d = 0,253 g/cm ³	2,68	1,26	2,14	1,57	1,12
PVC d = 0,30 g/cm ³	2,66	1,25	2,09	1,52	1,20
Mélange d = 0,07 g/cm ³	3,01	2,20	1,60	1,97	1,73
Mélange d = 0,14 g/cm ³	2,48	1,92	1,59	1,61	1,49
Mélange d = 0,22 g/cm ³	3,08	2,15	1,55	1,75	1,44
Mélange d = 0,3 g/cm ³	2,65	1,96	1,56	1,81	1,46
Mélange d = 0,13 g/cm ³	2,87	2,10	1,81	2,07	1,80
Mélange d = 0,30 g/cm ³	2,80	2,14	1,74	2,47	1,77

Tableau 15 : Incertitudes relatives (%) sur le rapport des signaux expérimentaux S_{Cl}/S_H .

L'incertitude relative sur le ratio S_{Cl}/S_H est inférieure à 3,1 % pour la gamme de matrices mesurées dans REGAIN. L'incertitude relative diminue lorsque l'énergie de la raie du chlore considérée augmente.

4.1.1.2 Propagation de l'incertitude statistique à la détermination de la teneur en PVC

La teneur en PVC se déduit du rapport des signaux en suivant une loi linéaire (cf. figure 15). La propagation d'erreur dans ce cas peut s'exprimer à partir d'une fonction linéaire $S_{Cl}/S_H = \alpha \cdot \%PVC$, ce qui donne pour l'incertitude une variation linéaire :

$$\sigma_{\%PVC} = \frac{\sigma_{S_{Cl}/S_H}}{\alpha}$$

Le tableau 16 présente l'incertitude relative associée à chacune des valeurs :

Densité (g/cm ³)	Teneur en PVC (%)	$\sigma_{\%PVC}$ (786/788 keV)	$\sigma_{\%PVC}$ (1951/1959 keV)	$\sigma_{\%PVC}$ (6110 keV)	$\sigma_{\%PVC}$ (7414 keV)	$\sigma_{\%PVC}$ (7790 keV)
0,05	100	2,32	1,12	1,34	1,28	0,95
0,10	100	1,08	1,25	1,80	1,46	1,08
0,18	100	1,15	1,39	2,33	1,70	1,29
0,25	100	1,20	1,39	2,48	1,70	1,32
0,30	100	1,14	1,41	2,51	1,82	1,40
0,14	34,13	0,85	1,69	1,11	1,53	1,29
0,08	31,20	2,27	1,62	1,30	1,54	1,30
0,14	18,44	2,65	1,85	1,29	1,34	1,41
0,30	16,10	2,00	1,50	1,20	1,31	1,28
0,22	11,30	2,29	1,61	1,39	1,67	1,34
0,30	8,33	2,73	2,09	1,62	2,29	1,55

Tableau 16 : Incertitudes relatives (%) sur la détermination de la teneur en PVC de la matrice.

L'incertitude relative sur la proportion en PVC de la matrice est donc inférieure à 3 % pour toutes les raies du chlore observées.

4.1.1.3 Propagation de l'incertitude statistique à la détermination du coefficient d'étalonnage K_{et}

La variation du coefficient K_{et} avec la proportion en PVC suit une loi de la forme $K_{et} = K_{min} + A_1 \cdot \exp(-a_1 \cdot \%PVC)$. L'incertitude sur le coefficient d'étalonnage s'écrit donc :

$$\sigma_{K_{et}} = \left| -a_1 \cdot A_1 \cdot \exp(-a_1 \cdot \%PVC) \right| \cdot \sigma_{\%PVC}$$

Le tableau 17 présente les incertitudes statistiques obtenues sur le coefficient K_{et} en fonction de la densité et de la teneur en chlore pour le doublet à 786/788 keV. L'incertitude statistique est inférieure à 2,2 % sur tout le domaine considéré.

Teneur en PVC (%)	d = 0,05 g/cm ³	d = 0,10 g/cm ³	d = 0,20 g/cm ³	d = 0,3 g/cm ³	d = 0,40 g/cm ³
100	0,82	0,94	0,59	0,16	0,06
34,13	0,50	0,00	1,71	1,95	2,18
31,20	0,17	0,34	0,60	0,72	0,83
18,44	0,27	0,58	1,12	1,53	1,95
16,10	0,28	1,09	1,20	1,68	2,16
11,30	0,19	0,43	0,86	1,24	1,60
8,33	0,11	0,24	0,49	0,72	0,93

Tableau 17 : Incertitudes relatives (%) sur la détermination du K_{et} en fonction de la teneur en PVC et de la densité de la matrice pour le doublet du chlore à 786/788 keV.

Le tableau 18 présente les incertitudes calculées pour une matrice de densité 0,20 g/cm³, pour différentes raies du chlore et en fonction de la teneur en PVC. Elles restent inférieures à 2 % quelle que soit la raie γ considérée.

Teneur en PVC (%)	σ_{Ket} (786/788 keV)	σ_{Ket} (1951/1959 keV)	σ_{Ket} (6110 keV)	σ_{Ket} (7414 keV)	σ_{Ket} (7790 keV)
100	0,59	0,56	0,89	0,68	0,51
34,13	1,71	1,20	1,04	1,24	1,00
31,20	0,60	1,20	0,79	1,09	0,92
18,44	1,12	0,80	0,64	0,76	0,64
16,10	1,20	0,92	0,71	1,01	0,68
11,30	0,86	0,60	0,42	0,43	0,45
8,33	0,49	0,37	0,29	0,32	0,31

Tableau 18 : Incertitudes relatives sur la détermination du K_{et} (%) en fonction de la teneur en PVC et de l'énergie des raies du chlore pour une matrice de densité 0,2 g/cm³.

L'incertitude statistique influe donc peu sur l'incertitude associée au coefficient d'étalonnage finalement choisi. Sur le domaine des compositions de matrice étudiées, l'incertitude statistique sur le coefficient d'étalonnage corrigé reste inférieure à 2,2 % quelle que soit la raie du chlore retenue pour obtenir la teneur en PVC de la matrice. Pour une densité intermédiaire de 0,20 g/cm³, l'incertitude associée au K_{et} reste inférieure à 1,8 %.

Il faut cependant tenir compte d'autres effets, dont la dispersion du rapport S_{Cl} / S_H en fonction de la densité pour une composition de matrice donnée.

4.1.2 Prise en compte d'autres sources d'incertitudes

4.1.2.1 Incertitude liée à la dispersion du rapport S_{Cl} / S_H avec la densité

Expérimentalement, hormis les matrices composées uniquement de PVC ou de cellulose, les matrices mesurées par spectrométrie gamma dans REGAIN sont toutes de composition et de densités différentes. Le jeu de matrices PVC couvre la gamme allant de 0,05 g/cm³ à 0,30 g/cm³. Une dispersion du rapport S_{Cl} / S_H en fonction de la densité est constatée dans ce cas (cf. § 3.1.2). Pour ces matrices, la dispersion sur la teneur en PVC liée à la densité est présentée dans le tableau 19 pour les différentes énergies observées.

Densité (g/cm ³)	S_{Cl} (786/788 keV) / S_H	S_{Cl} (1951/1959 keV) / S_H	S_{Cl} (6110 keV) / S_H	S_{Cl} (7414 keV) / S_H	S_{Cl} (7790 keV) / S_H
0,05	8,45	5,08	1,36	0,34	0,23
0,1	9,64	5,92	1,61	0,39	0,28
0,18	10,43	6,80	1,97	0,46	0,35
0,253	10,56	6,96	2,10	0,47	0,36
0,3	10,46	7,15	2,18	0,51	0,36
Moyenne	9,91	6,38	1,85	0,43	0,32
Ecart max	1,46	1,30	0,48	0,10	0,08
Ecart max (%)	14,71	20,39	26,25	21,90	26,68

Tableau 19 : Dispersion du rapport S_{Cl} / S_H pour les matrices contenant uniquement du PVC.

La dispersion est minimale pour le doublet à 786/788 keV, pour lequel elle atteint 14,71 %. La dispersion maximale est atteinte pour la raie à 7414 keV avec 26,68 % d'écart à la moyenne.

N'ayant pas accès expérimentalement à la loi de variation de cette dispersion en fonction de la teneur en PVC de la matrice, il est nécessaire de prendre en compte l'hypothèse la plus contraignante pour notre étude. La matrice la plus pénalisante étant la matrice constituée uniquement de PVC, la dispersion sur le rapport S_{Cl} / S_H est supposée maximale dans ce cas.

En reportant cette dispersion maximale pour les autres teneurs expérimentales, on obtient les données présentées dans le tableau 20. La relation entre le rapport S_{Cl} / S_H et la teneur en PVC étant supposée linéaire (cf. figure 15), l'incertitude sur la teneur en PVC déduite du rapport des signaux expérimentaux est alors constante sur toute la gamme des teneurs en PVC : c'est la valeur calculée à partir des signaux gamma mesurés pour les matrices contenant uniquement du PVC.

Energie (keV)	σ_{PVC}
786/788	14,8
1951/1959	20,6
6110	26,6
7414	22,1
7790	27,1

Tableau 20 : Incertitudes sur la détermination de la teneur en PVC pour différentes énergies.

L'incertitude la plus faible est obtenue pour le doublet à 786/788 keV : elle atteint 14,8 %. Il n'est alors pas possible par ce biais de déterminer une teneur en PVC inférieure à cette valeur dans les matrices présentant des signaux chlore supérieurs à la limite de détection.

Etant donnée l'incertitude engendrée sur la teneur en PVC, il apparaît très important pour la méthode de correction proposée d'identifier la cause de la dispersion sur le rapport S_{Cl} / S_H avec la densité observée pour les matrices contenant uniquement du PVC.

Il conviendrait donc de quantifier la dispersion de ce rapport avec la densité pour d'autres teneurs en PVC, afin de comprendre et de préciser la loi de variation de la dispersion avec la teneur en PVC. Ainsi, la méthode pourrait gagner en précision, notamment pour les matrices à faible teneur en PVC, dans l'hypothèse où la dispersion diminue avec la teneur en PVC par exemple.

4.1.2.2 Incertitude résultant de la dispersion sur le coefficient d'étalonnage corrigé

La propagation de l'incertitude obtenue sur la teneur en PVC à la détermination du coefficient d'étalonnage K_{et} doit tenir compte des incertitudes liées :

- au calcul MCNP des coefficients d'étalonnage ;
- aux coefficients de régression ;
- à la détermination de la densité de la matrice.

Les coefficients d'étalonnage sont calculés par MCNP avec une incertitude inférieure à 5%. Il convient d'y ajouter les écarts systématiques de modélisation imputables à la description de la géométrie de mesure (méconnaissance de la description du générateur de neutrons et de la composition des matériaux, notamment la description des matrices), évalués à 5% pour le schéma de calcul employé.

La régression sur les courbes $K_{et} = f(\%PVC)$ est réalisée avec le programme WinReg [43], qui permet d'obtenir une estimation des incertitudes associées aux coefficients de régression (tableau 21). Il ne donne cependant pas accès aux covariances entre les coefficients, ce qui peut se révéler insuffisant pour la propagation d'erreur, comme on va le voir ci-dessous.

Densité (g/cm ³)	K_{min}	σ_{Kmin}	A_1	σ_{A1}	a_1	σ_{a1}
0,05	1,522	1,308	8,548	1,268	0,008	0,002
0,1	2,294	0,147	7,488	0,136	0,020	0,001
0,2	1,404	0,085	7,243	0,106	0,036	0,002
0,3	1,058	0,137	6,202	0,237	0,056	0,006
0,4	0,720	0,070	5,267	0,139	0,070	0,005

Tableau 21 : Coefficients de régression obtenus par WinReg pour les abaques d'étalonnage reliant K_{et} à la teneur en PVC.

La propagation d'erreur pour une fonction de plusieurs variables $y = f(x_i)$ s'écrit de façon générale sous la forme suivante [44], en tenant compte des covariances (cov) entre les différents paramètres :

$$\sigma_y^2 = \sum_i \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 \cdot \sigma_{x_i}^2 + 2 \cdot \sum_i \sum_j \frac{\partial f}{\partial x_i} \frac{\partial f}{\partial x_j} \text{cov}(x_i, x_j)$$

Le tableau 22 donne la valeur des incertitudes sur le coefficient K_{corr} provenant de l'incertitude sur la teneur en PVC (de 10% à 100%) et différentes densités de matrice (de 0,05 à 0,4 g/cm³), calculées à partir des écarts-types données par WinReg, de la façon suivante² :

$$\sigma_{K_{corr}}^2 = \sigma_{K_{min}}^2 + |\exp(-a_1 \cdot \%PVC)|^2 \cdot \sigma_{A_1}^2 + |\%PVC \cdot A_1 \cdot \exp(-a_1 \cdot \%PVC)|^2 \cdot \sigma_{a_1}^2 + |a_1 \cdot A_1 \cdot \exp(-a_1 \cdot \%PVC)|^2 \cdot \sigma_{\%PVC}^2$$

Pour une composition de matrice donnée, l'incertitude $\sigma_{K_{corr}}$ diminue quand la densité augmente pour les matrices dont la teneur en PVC est supérieure à 60 %. Dans cette plage de teneurs en PVC, la variation du coefficient d'étalonnage avec la teneur en PVC est en effet de moins en moins importante quand la densité augmente.

A contrario, l'incertitude augmente avec la densité pour des matrices dont la teneur en PVC est inférieure à 20 %. Elle peut atteindre près de 100 % pour une matrice de densité 0,4 g/cm³ contenant 10 % de PVC. Dans ce cas encore, c'est la différence de variation du coefficient d'étalonnage avec la teneur en PVC qui peut expliquer ce phénomène. En effet, une variation de la teneur en PVC, en-deçà de 20 %, entraîne une plus grande incertitude pour les matrices les plus denses, pour lesquelles la variation du K_{et} avec la teneur en PVC est plus importante (cf. figure 17).

² WinReg ne donne pas accès à la valeur des covariances entre les coefficients. L'écart-type calculé ne tient donc compte que des variances des différents coefficients. La variance des coefficients à faible densité étant élevée, l'incertitude résultant sur K_{corr} est également importante. La prise en compte des covariances pourrait diminuer cette incertitude.

Densité (g/cm ³)	Teneur en PVC (%)	$\sigma_{\%PVC}$	K_{corr} ((c/s)/mg _{Pueq})	K_{corr} min	K_{corr} max	σ_{Kcorr}	σ_{Kcorr} (%)
0,05	100	14,80	5,17	3,53	6,82	1,69	32,72
0,1	100	14,80	3,04	2,68	3,29	0,42	13,86
0,2	100	14,80	1,62	1,49	1,76	0,18	11,34
0,3	100	14,80	1,12	0,98	1,26	0,16	14,42
0,4	100	14,80	0,76	0,69	0,83	0,09	11,94
0,05	80	14,80	5,85	4,16	7,54	1,73	29,66
0,1	80	14,80	3,59	3,10	4,09	0,54	15,05
0,2	80	14,80	1,83	1,67	1,98	0,20	10,73
0,3	80	14,80	1,18	1,02	1,33	0,17	14,86
0,4	80	14,80	0,77	0,70	0,85	0,09	12,06
0,05	60	14,80	6,66	4,92	8,40	1,78	26,79
0,1	60	14,80	4,40	3,70	5,10	0,74	16,70
0,2	60	14,80	2,24	2,00	2,48	0,27	12,04
0,3	60	14,80	1,34	1,10	1,58	0,26	19,05
0,4	60	14,80	0,83	0,72	0,94	0,12	15,04
0,05	40	14,80	7,64	5,83	9,46	1,85	24,24
0,1	40	14,80	5,57	4,55	6,58	1,04	18,63
0,2	40	14,80	3,10	2,50	3,69	0,60	19,50
0,3	40	14,80	1,81	1,22	2,40	0,60	32,95
0,4	40	14,80	1,06	0,71	1,41	0,35	33,07
0,05	20	14,80	8,83	6,92	10,75	1,95	22,12
0,1	20	14,80	7,24	5,77	8,72	1,50	20,64
0,2	20	14,80	4,85	3,15	6,56	1,71	35,18
0,3	20	14,80	3,20	1,50	4,90	1,71	53,29
0,4	20	14,80	2,03	0,67	3,38	1,36	66,88
0,05	10	14,80	9,52	7,53	11,50	2,02	21,25
0,1	10	14,80	8,35	6,55	10,14	1,81	21,64
0,2	10	14,80	6,34	3,40	9,28	2,94	46,43
0,3	10	14,80	4,70	1,76	7,64	2,94	62,59
0,4	10	14,80	3,36	0,01	6,07	3,35	99,72

Tableau 22 : Variation de l'incertitude σ_{corr} sur le coefficient K_{corr} en fonction de la teneur en PVC et de la densité de la matrice.

4.1.3 Apports de la méthode de correction proposée

4.1.3.1 Définition du gain de la méthode de correction

L'apport de la méthode de correction proposée repose sur la constatation suivante : sans connaissance préalable de la nature de la matrice, le coefficient de référence K_{ref} choisi pour annoncer une masse de contaminant est le coefficient le plus pénalisant, c'est-à-dire celui obtenu pour la matrice contenant uniquement du PVC. Dans le cas d'une mesure sur une matrice de composition inconnue, le coefficient d'étalonnage choisi est donc systématiquement sous-estimé, ce qui conduit à surestimer la masse de contaminant annoncée³.

$$M \text{ (mg}_{P_{ueq}}) = S_u \text{ (c/s)} / K_{ref} \text{ ((c/s)/mg}_{P_{ueq}})$$

L'incertitude associée à cette masse annoncée doit prendre en compte les différents termes d'incertitudes provenant du choix de K_{ref} : incertitude de mesure et incertitude due au choix du coefficient pénalisant.

$$\sigma_M = \frac{S_u}{K_{ref}} \sqrt{\left(\frac{\sigma_{S_u}}{S_u}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{K_{ref}}}{K_{ref}}\right)^2}$$

L'incertitude de mesure est de l'ordre de 7,5 %. L'incertitude σ_{choix} due au choix du coefficient le plus pénalisant est, pour la densité de la matrice concernée d, $(K_{cellulose}(d) - K_{ref}(d))$.

L'incertitude σ_{choix} conduit à une sous-estimation du coefficient d'étalonnage. Le coefficient d'étalonnage réel à appliquer est systématiquement supérieur ou égal au coefficient pénalisant. L'incertitude est donc uniquement majorante pour le K_{ref} , et conduira à des incertitudes uniquement minorantes sur la masse qui en sera déduite.

L'incertitude statistique σ_{stat} est quant à elle distribuée autour de la valeur moyenne K_{ref} .

Cela conduit à une incertitude asymétrique $\sigma_{K_{ref}}$ sur le coefficient K_{ref} .

Densité (g/cm ³)	$K_{ref} \text{ (c/s)/mg}_{P_{ueq}}$	$K_{ref} - \sigma_{K_{ref}}$	$K_{ref} + \sigma_{K_{ref}}$
0,05	5,17	4,78	10,27
0,10	3,04	2,81	9,67
0,20	1,62	1,50	8,47
0,30	1,12	1,04	7,27
0,40	0,76	0,70	6,07

Tableau 23 : Variation de l'incertitude sur le coefficient d'étalonnage de référence avec la densité dans le cas de la matrice pénalisante (100 % PVC).

³ Dans un cadre industriel, une connaissance *a priori* du contenu de la matrice peut permettre d'affiner le choix du coefficient de référence, en définissant par exemple des matrices moyennes, ou en classant les colis selon un critère d'absorption (faible, moyen, fort) [46]. Cela ne remet cependant pas en cause la discussion présente, partant du cas de référence le plus défavorable sur la gamme de matrices étudiées.

Un cas d'école est défini pour évaluer les performances de la méthode de correction proposée. Le signal utile neutronique issu de l'I.N.A. est fixé arbitrairement à 100 ± 10 (c/s).

Les masses qui découlent de l'interprétation d'un tel niveau de signal avec le coefficient d'étalonnage I.N.A. le plus pénalisant sont présentées dans le tableau 24.

Densité (g/cm ³)	Masse en interprétation pénalisante M (mg _{Pueq})	M _{pénalisante} - σ_M min	M _{pénalisante} + σ_M max
0,05	19,3	9,7	20,9
0,10	32,9	10,3	35,6
0,20	61,6	11,8	66,6
0,30	89,1	13,8	96,3
0,40	131,7	16,5	142,3

Tableau 24 : Masse annoncée dans le cas le plus pénalisant pour différentes densités.

La prise en compte de la méconnaissance de la composition de la matrice entraîne une incertitude élevée sur la masse annoncée. Cette incertitude est la plus élevée pour la matrice de densité maximale, puisque c'est pour celle-ci que la variation du coefficient d'étalonnage avec la teneur en PVC est maximale (cf. tableau 23).

4.1.3.2 Evaluation du gain apporté par la méthode

4.1.3.2.1 Cas des matrices constituées uniquement de cellulose

La méthode de correction employée repose en premier lieu sur le classement de la matrice mesurée dans la filière « cellulose » ou dans la filière « mélanges PVC/cellulose ». Lorsque le signal chlore est inférieur à la Limite de Détection, la matrice est considérée ne contenir que de la cellulose.

Dans ce cas particulièrement favorable, la méthode de correction permet d'obtenir le gain maximal (cf. tableau 25). En effet, le coefficient d'étalonnage lié à la matrice cellulose est le coefficient maximal sur le domaine considéré (cf. figure 17). D'autre part, le coefficient K_{corr} retenu pour interpréter les mesures I.N.A. n'est entaché que de l'incertitude statistique sur la détermination du coefficient de la matrice cellulose (évaluée à 7,5 %).

La masse annoncée et son incertitude associée valent alors :

$$M = S_u / K_{corr}$$

$$\sigma_M = \frac{S_u}{K_{corr}} \sqrt{\left(\frac{\sigma_{S_u}}{S_u}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{K_{corr}}}{K_{corr}}\right)^2}$$

Densité (g/cm ³)	K _{ref} (c/s)/mg _{Pueq}	K _{corr} (c/s)/mg _{Pueq}	K _{corr} - $\sigma_{K_{corr}}$	K _{corr} + $\sigma_{K_{corr}}$
0,05	5,17	10,27	9,50	11,04
0,10	3,04	9,67	8,94	10,39
0,20	1,62	8,47	7,83	9,10
0,30	1,12	7,27	6,73	7,82
0,40	0,76	6,07	5,62	6,53

Tableau 25 : Variation de l'incertitude due à la composition de la matrice avec la densité dans une matrice cellulosé.

L'interprétation du signal neutronique conduit dans ces conditions à la valeur la plus précise de la masse réellement présente dans le colis (cf. tableau 26).

Densité (g/cm ³)	Masse pénalisante (mg)	Masse corrigée (mg)
0,05	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	9,7 ^{+0,8} _{-0,7}
0,10	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	10,3 ^{+0,8} _{-0,7}
0,20	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	11,8 ^{+1,0} _{-0,8}
0,30	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	13,8 ^{+1,1} _{-1,0}
0,40	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	16,5 ^{+1,3} _{-1,1}

Tableau 26 : Comparaison des masses en interprétation pénalisante et interprétées avec le coefficient d'étalonnage des matrices composées uniquement de cellulose.

4.1.3.2.2 Cas des matrices composées d'un mélange de cellulose et de PVC

Lorsque le signal chlore est supérieur à la Limite de Détection, la matrice est considérée contenir un mélange de cellulose et de PVC.

Dans ce cas, l'incertitude apportée par la dispersion de l'indicateur S_{Cl} / S_H en fonction de la densité entraîne une forte incertitude résiduelle sur la détermination de la teneur en PVC de la matrice et par conséquent sur le choix du coefficient d'étalonnage corrigé.

Le tableau 27 compare les valeurs des masses données par l'interprétation pénalisante et par l'interprétation réalisée avec les coefficients corrigés, pour des matrices de densités et de teneurs appartenant au domaine étudié.

Ces valeurs sont reprises sur les figures 19 à 23 représentant la variation de la masse annoncée et de son incertitude associée pour chacune des densités considérées : 0,05 g/cm³, 0,10 g/cm³, 0,20 g/cm³, 0,30 g/cm³ et 0,40 g/cm³. Les masses corrigées obtenues pour les matrices contenant uniquement de la cellulose, pour lesquelles l'incertitude est minimale, sont représentées en jaune. Les masses obtenues avec le coefficient pénalisant sont représentées en rouge.

Le gain apporté par la méthode de correction est mis en évidence sur ces figures :

- la valeur de la masse corrigée est systématiquement inférieure ou égale à la masse obtenue avec l'interprétation pénalisante ;
- l'incertitude associée à la masse corrigée est dans la quasi-totalité des cas inférieure à celle associée à la masse pénalisante, sauf dans les cas extrêmes (100 % PVC pour $d = 0,05 \text{ g/cm}^3$, 10 % PVC pour $d = 0,40 \text{ g/cm}^3$).
Le tableau 27 présente la plage d'incertitude associée à la valeur de la masse obtenue. Cette valeur permet de montrer la diminution de l'incertitude de la mesure par I.N.A. apportée par la méthode de correction proposée. Les nombres apparaissant en vert et en gras mettent en valeur les cas pour lesquels l'incertitude associée à la masse corrigée sont inférieures à celles associées à la masse interprétée avec le coefficient pénalisant. **L'objectif de la réduction des incertitudes de la mesure I.N.A dues à la méconnaissance de la matrice est donc atteint ;**
- la masse maximale $M + \sigma_M$ est dans de nombreux cas inférieure à la masse maximale $M_{\text{pen}} + \sigma_{M_{\text{pen}}}$ obtenue sans correction.
Dans le cas de la déclaration de la masse contenue dans le colis, la masse annoncée devrait être la masse maximale estimée, afin de majorer la valeur annoncée et prendre une marge de sécurité. La masse qu'il conviendrait d'annoncer pourrait par exemple être $M + \sigma_M$. Le tableau 27 présente dans la colonne « masse annoncée » la valeur minimum obtenue en comparant pour chaque cas les $(M + \sigma_M)$ dans le cas pénalisant et dans le cas corrigé. En vert et en gras sont mis en valeur les cas pour lesquels la masse corrigée conduit à annoncer une masse plus faible que celle obtenue sans correction. La méthode de correction permet donc d'annoncer des masses inférieures à la masse pénalisante dans le cas de matrices possédant une teneur en PVC comprise entre 10 % et 80 %. Le meilleur résultat est obtenu dans ce cadre pour des matrices de densité intermédiaires ($0,2$ à $0,3 \text{ g/cm}^3$) et de teneur en PVC inférieures à 80 %. Les matrices de densité $0,40 \text{ g/cm}^3$ conduisent à une masse corrigée du même ordre de grandeur que la masse obtenue sans correction. Cela est dû à la saturation du K_{et} quand la teneur en PVC augmente, plus prononcée quand la densité est élevée.

L'apport de la méthode de correction proposée est ainsi mis en évidence dans le cas des matrices composées d'un mélange de PVC et de cellulose de densité inférieures à $0,40 \text{ g/cm}^3$. Sur le domaine de compositions et de densités étudié, une réduction d'incertitudes est donc apportée dans la plupart des cas (cf. figure 24).

Densité (g/cm ³)	Teneur en PVC (%)	σ%PVC	Masse pénalisante (mg)	Plage d'incertitude (σ _{penmax} + σ _{penmin})	Masse corrigée (mg)	Plage d'incertitude (σ _{max} + σ _{min})	Masse annoncée (mg)
0,05	100	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	19,3 ^{+9,0} _{-4,7}	13,7	28,4
0,1	100	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	32,9 ^{+4,3} _{-2,6}	6,9	37,3
0,2	100	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	61,6 ^{+5,7} _{-4,8}	10,6	67,3
0,3	100	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	89,1 ^{+12,5} _{-9,8}	22,3	101,6
0,4	100	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	131,7 ^{+13,5} _{-11,2}	24,7	145,2
0,05	80	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	17,1 ^{+7,0} _{-3,8}	10,8	24,1
0,1	80	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	27,8 ^{+4,4} _{-3,3}	7,7	32,2
0,2	80	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	54,8 ^{+5,0} _{-4,2}	9,3	59,8
0,3	80	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	84,9 ^{+12,7} _{-9,8}	22,5	97,6
0,4	80	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	129,4 ^{+13,7} _{-11,3}	24,9	143,1
0,05	60	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	15,0 ^{+5,3} _{-3,1}	8,4	20,3
0,1	60	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	22,7 ^{+4,3} _{-3,1}	7,4	27,0
0,2	60	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	44,6 ^{+5,4} _{-4,3}	9,7	50,0
0,3	60	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	74,7 ^{+16,4} _{-11,4}	27,8	91,0
0,4	60	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	120,8 ^{+18,6} _{-14,2}	32,9	139,4
0,05	40	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	13,1 ^{+4,1} _{-2,5}	6,6	17,1
0,1	40	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	18,0 ^{+4,0} _{-2,8}	6,8	22,0
0,2	40	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	32,3 ^{+7,6} _{-5,2}	12,8	39,9
0,3	40	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	55,2 ^{+26,7} _{-13,6}	40,3	81,9
0,4	40	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	94,4 ^{+45,7} _{-23,2}	68,9	140,1
0,05	20	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	11,3 ^{+3,1} _{-2,0}	5,2	14,5
0,1	20	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	13,8 ^{+3,5} _{-2,3}	5,9	17,3
0,2	20	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	20,6 ^{+11,1} _{-5,4}	16,5	31,7
0,3	20	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	31,2 ^{+35,5} _{-10,9}	46,4	66,8
0,4	20	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	49,3 ^{+99,4} _{-19,8}	119,1	148,7
0,05	10	14,8	19,3 ^{+1,6} _{-9,6}	11,2	10,5 ^{+2,8} _{-1,8}	4,6	13,3
0,1	10	14,8	32,9 ^{+2,7} _{-22,6}	25,3	12,0 ^{+3,3} _{-2,1}	5,4	15,3
0,2	10	14,8	61,6 ^{+5,0} _{-49,8}	54,7	15,8 ^{+13,7} _{-5,0}	18,7	29,4
0,3	10	14,8	89,1 ^{+7,2} _{-75,3}	82,5	21,3 ^{+35,5} _{-8,2}	43,7	56,8
0,4	10	14,8	131,7 ^{+10,7} _{-115,2}	125,9	29,8 ^{+...[*]} _{-13,3}	- *	- *

* : pour cette densité et cette teneur en PVC, l'incertitude sur le K_{corr} conduit à un K_{corr} - σ_{Kcorr} = 0, donc à une valeur infinie pour la borne supérieure de l'incertitude sur la masse corrigée.

Tableau 27 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction.

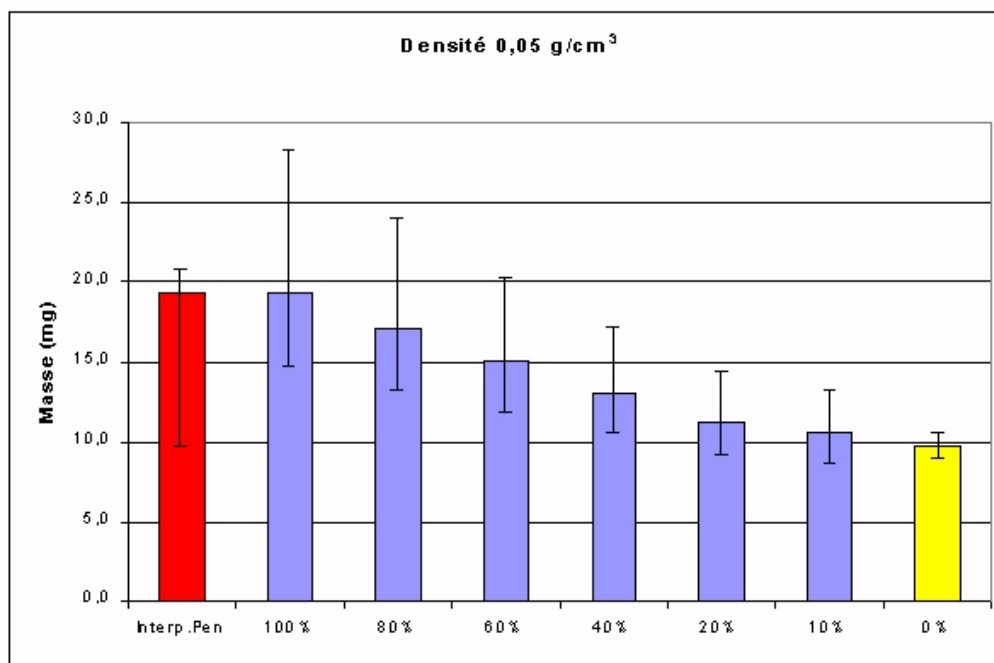


Figure 19 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction pour une matrice de densité 0,05 g/cm³.

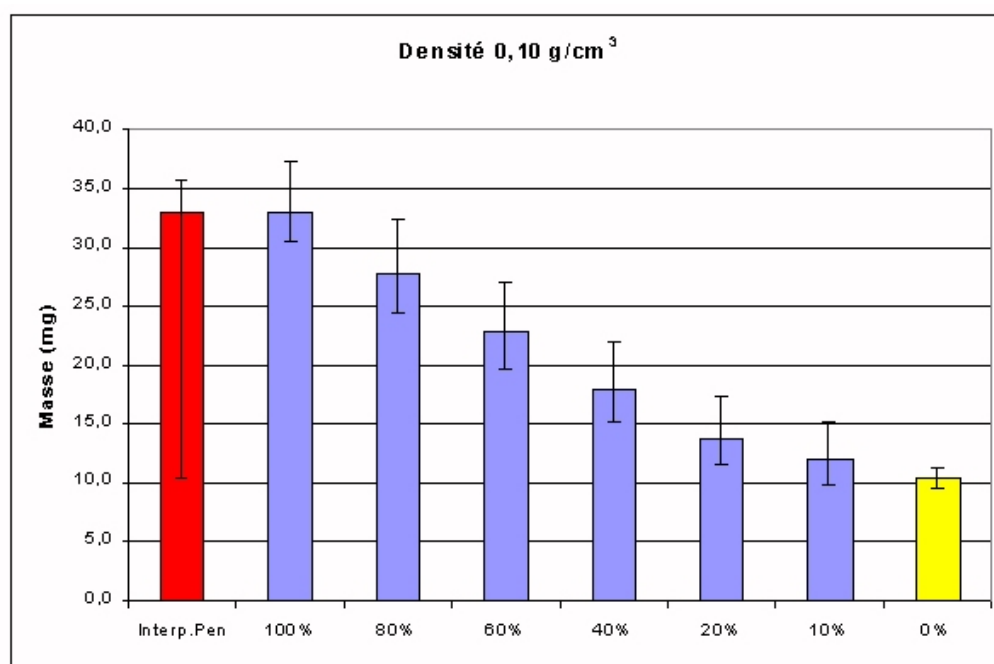


Figure 20 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction pour une matrice de densité 0,10 g/cm³.

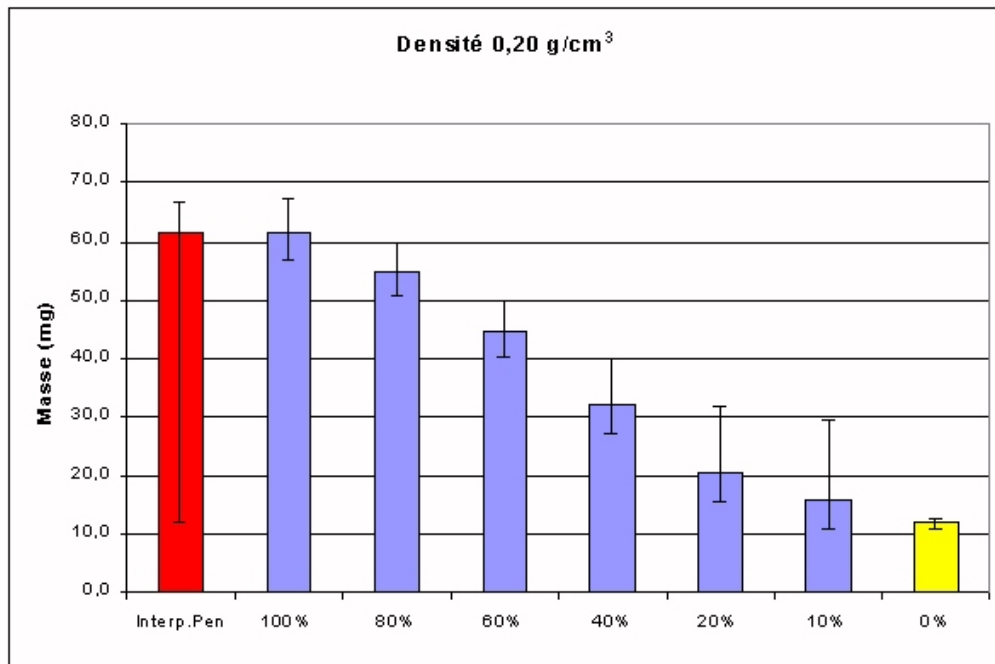


Figure 21 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction pour une matrice de densité 0,20 g/cm³.

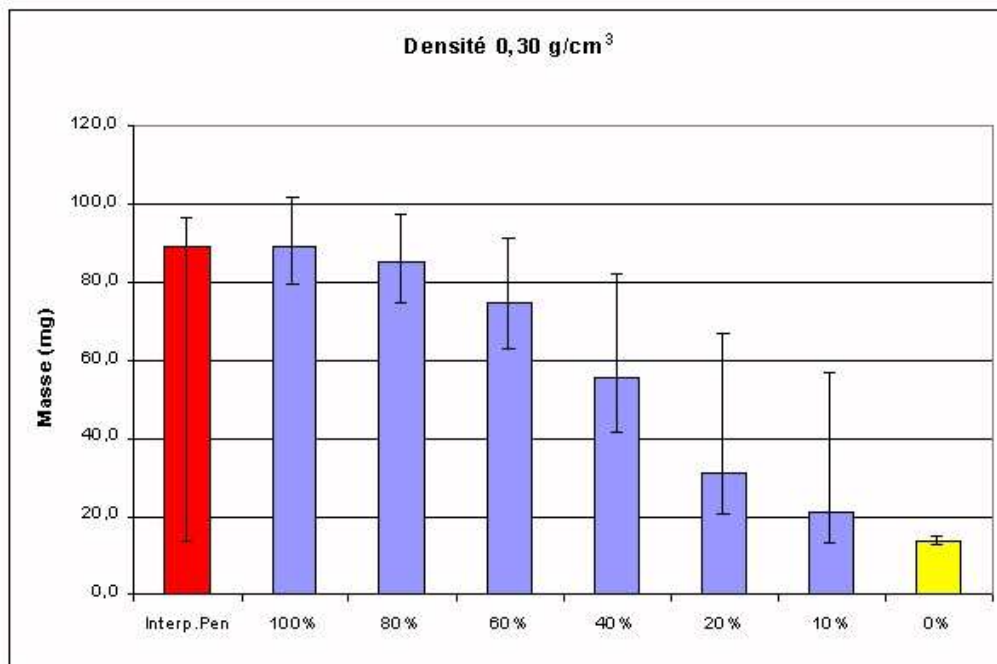


Figure 22 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction pour une matrice de densité 0,30 g/cm³.

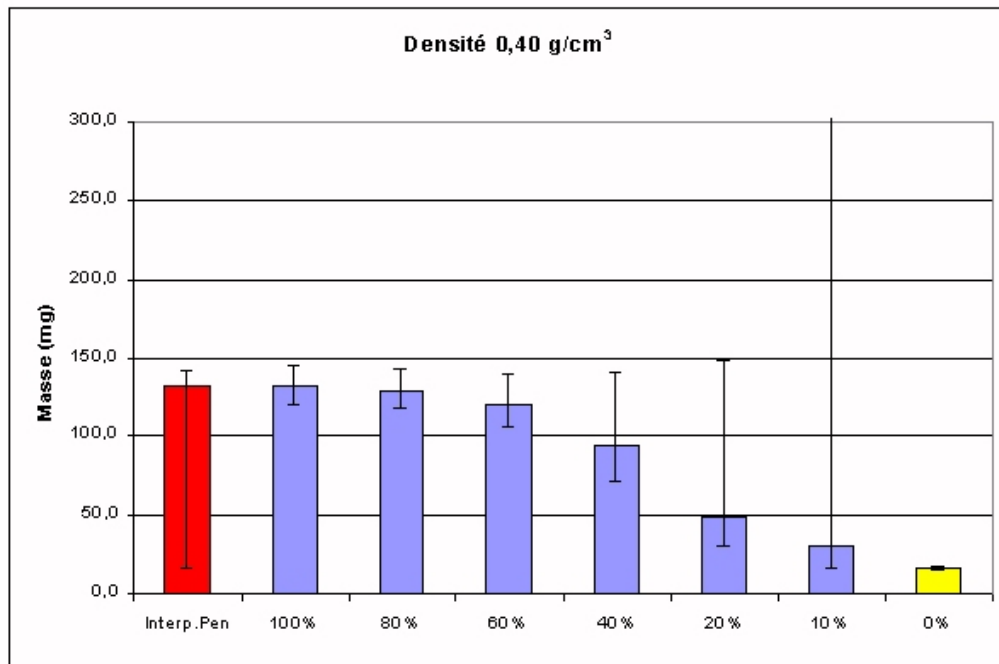


Figure 23 : Comparaison des masses pénalisantes et des masses obtenues par la méthode de correction pour une matrice de densité 0,40 g/cm³.

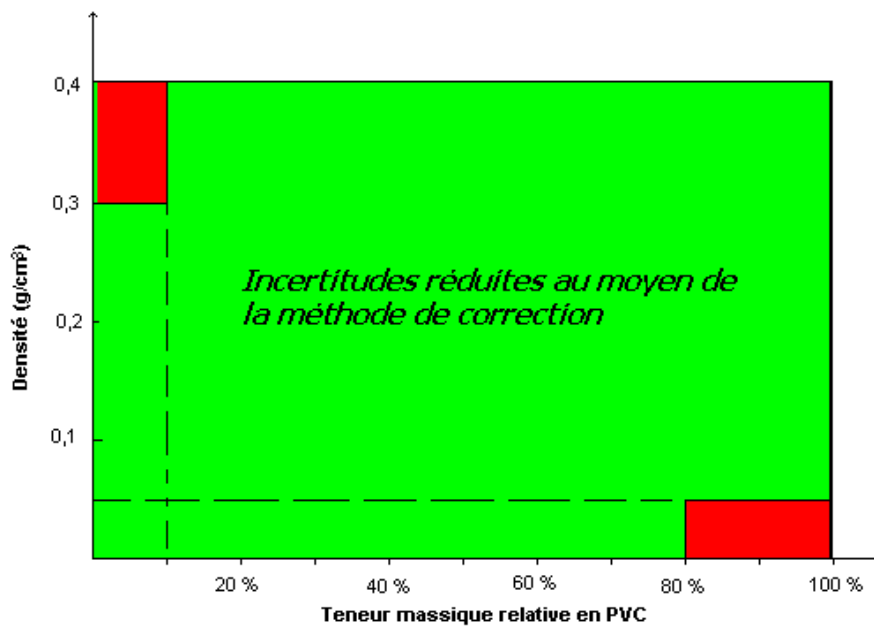


Figure 24 : Récapitulation de l'apport de la méthode de correction proposée en termes de réduction de l'incertitude associée à l'interprétation du signal neutronique I.N.A.

5 Conclusion

La spectrométrie des rayonnements gamma de capture dans la cellule REGAIN permet d'obtenir des signaux gamma provenant de l'hydrogène et du chlore de matrices homogènes, de densité allant jusqu'à $0,40 \text{ g/cm}^3$, à des niveaux suffisants pour mettre en œuvre la méthode de correction proposée. Celle-ci est basée sur la constitution d'abaques reliant d'une part un ratio $S_{\text{Cl}}/S_{\text{H}}$ à la teneur en PVC (abaques expérimentaux) et d'autre part la teneur en PVC au coefficient d'étalonnage I.N.A. (abaques calculés par MCNP).

La mesure par spectrométrie permet de différencier les matrices hydrogénées (donc par hypothèse composées uniquement de cellulose) des matrices chlorées (par hypothèse constituée d'un mélange de cellulose et de PVC). Dans ce dernier cas, leur teneur en PVC est déterminée à partir du ratio des aires nettes S_{Cl} (786/788 keV) / S_{H} sans se préoccuper à ce stade de leur densité. Dans ces conditions, la teneur en PVC de la matrice ne peut ainsi être estimée en-deçà de 15 %. L'incertitude sur le coefficient d'étalonnage corrigé est donc particulièrement élevée pour les matrices de faible teneur en PVC.

Cependant, l'interprétation des signaux neutroniques à partir du coefficient corrigé, établi dans un cas d'école, montre qu'un gain est apporté par rapport à la situation antérieure. En effet, quand la composition de la matrice est inconnue, un coefficient d'étalonnage I.N.A. pénalisant est appliqué, entraînant une incertitude élevée sur la masse annoncée. La méthode de correction permet d'améliorer l'interprétation du signal neutronique dans de très nombreux cas dans le domaine de compositions et de densités étudié.

Dans le cas d'une matrice reconnue comme étant composée uniquement de cellulose, l'interprétation du signal neutronique conduit dans ces conditions à la valeur la plus précise de la masse réellement présente dans le colis.

Dans le cas d'une matrice reconnue comme étant constituée uniquement de PVC, l'incertitude est réduite mais la masse annoncée est supérieure à la masse obtenue en interprétation pénalisante.

Dans le cas d'une matrice contenant un mélange de cellulose et de PVC, l'incertitude est réduite et la masse annoncée est inférieure ou égale à la masse obtenue en interprétation pénalisante.

Les limitations actuelles de la méthode de correction des effets de matrice proposée repose essentiellement sur la dispersion observée expérimentalement sur le ratio $S_{\text{Cl}}/S_{\text{H}}$ en fonction la densité pour une matrice de teneur en PVC donnée. Cette variation va à l'encontre de la prédiction théorique qui laisse présager d'une relative indépendance de ce rapport avec la densité de la matrice. Les causes de cette différence de comportement n'ont pas été élucidées et il conviendrait dans le cadre de l'amélioration de cette méthode de les identifier, afin d'améliorer les performances de la méthode de correction proposée.

TABLE DES FIGURES ET TABLEAUX

FIGURE 1 : SCHÉMA SIMPLIFIÉ DE CÂBLAGE DES TROIS CODEURS EN PARALLÈLE.....	83
FIGURE 2 : SECTION EFFICACE DE LA RÉACTION $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}^*$ [7].....	83
TABLEAU 1 : UTILITÉ D'UN CAPOT DE B_4C AUTOUR DE LA DIODE GERMANIUM.....	84
FIGURE 3 : COMPARAISON DES SPECTRES OBTENUS AVEC ET SANS CAPOT, EN ACQUISITION CONTINUE ET INTERPULSE.....	85
TABLEAU 2 : VARIATION DU TEMPS MORT AVEC L'ÉMISSION NEUTRONIQUE PENDANT L'IMPULSION DU GÉNÉRATEUR DE NEUTRONS (TR = 90 s).....	86
TABLEAU 3 : VARIATION DU TEMPS MORT AVEC L'ÉMISSION NEUTRONIQUE ENTRE LES IMPULSIONS DU GÉNÉRATEUR DE NEUTRONS (TR = 810 s).....	87
FIGURE 4 : VARIATION TEMPORELLE DU TEMPS MORT CORRIGÉ PENDANT UNE PÉRIODE DE TIR DU GÉNÉRATEUR DE NEUTRONS (100 μs - 1000 μs).....	88
TABLEAU 4 : VARIATION DES SIGNAUX D'INTÉRÊT EN FONCTION DES PARAMÈTRES TEMPORELS.....	89
TABLEAU 5 : TENEURS EN PVC DES MATRICES CONTENANT UN MÉLANGE DE PVC ET DE CELLULOSE.....	90
TABLEAU 6 : VARIATION DU TEMPS MORT AVEC LE FLUX NEUTRONIQUE EN IRRADIATION CONTINUE.....	91
FIGURE 5 : DIODE DANS LA FACE AVANT DE LA CELLULE REGAIN.....	91
TABLEAU 7 : COMPARAISON DES SIGNAUX UTILES DE PROMETHEE 6 ET REGAIN.....	92
FIGURE 6 : VARIATION DES SIGNAUX UTILES CHLORE (CORRIGÉS DU TEMPS MORT) AVEC LA DENSITÉ DES MATRICES PVC DANS LE CAS OÙ LA DIODE EST PLACÉE EN FACE AVANT DE LA CELLULE REGAIN.....	93
TABLEAU 8 : AIRES NETTES CORRIGÉES DU TEMPS MORT ISSUES DES MESURES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA LORSQUE LA DIODE EST PLACÉE EN FACE AVANT DE LA CELLULE REGAIN.....	94
FIGURE 7 : CELLULE REGAIN AVEC LA DIODE AU MILIEU DE LA PORTE.....	95
TABLEAU 9 : AIRES NETTES CORRIGÉES DU TEMPS MORT ISSUES DES MESURES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA AVEC LA DIODE DANS LA PORTE DE LA CELLULE REGAIN.....	96
FIGURE 8 : VARIATION DES SIGNAUX UTILES CHLORE (CORRIGÉS DU TEMPS MORT) AVEC LA DENSITÉ DES MATRICES PVC DANS LE CAS OÙ LA DIODE EST PLACÉE À TRAVERS LA PORTE DE LA CELLULE REGAIN.....	97
FIGURE 9 : MAILLAGE DE LA MATRICE EN 120 ISOVOLUMES.....	98
TABLEAU 10 : RÉPARTITION PAR MAILLE DU NOMBRE DE CAPTURES PAR NEUTRON SOURCE ÉMIS ET PAR cm^3 CALCULÉ PAR MCNP DANS DIFFÉRENTES MATRICES.....	99
FIGURE 10 : VARIATION MAILLE PAR MAILLE DU NOMBRE DE CAPTURES (/NEUTRON ÉMIS / cm^3) DANS UNE MATRICE CONTENANT DU PVC, POUR QUATRE DENSITÉS DIFFÉRENTES.....	100
FIGURE 11 : VARIATION MAILLE PAR MAILLE DU NOMBRE DE CAPTURES (/NEUTRON ÉMIS / cm^3) DANS UNE MATRICE CONTENANT DE LA CELLULOSE, POUR QUATRE DENSITÉS DIFFÉRENTES.....	100
FIGURE 12 : VARIATION MAILLE PAR MAILLE DU RENDEMENT DE DÉTECTION (/GAMMA ÉMIS / cm^3) DANS UNE MATRICE PVC AVEC LA DIODE PLACÉE EN FACE AVANT DE REGAIN, POUR QUATRE DENSITÉS DIFFÉRENTES.....	101
FIGURE 13 : VARIATION MAILLE PAR MAILLE DU PARAMÈTRE P POUR UN DÉTECTEUR PLACÉ EN FACE AVANT DE LA CELLULE REGAIN.....	102
FIGURE 14 : VARIATION MAILLE PAR MAILLE DU PARAMÈTRE P POUR UN DÉTECTEUR PLACÉ DANS LA PORTE DE LA CELLULE REGAIN.....	103
TABLEAU 11 : LIMITES DE DÉTECTION DU CHLORE (EN COUPS) DANS DES MATRICES CONSTITUÉES ENTIÈREMENT DE CELLULOSE.....	105
TABLEAU 12 : VALEURS DES SIGNAUX UTILES (COUPS) POUR LA MATRICE CELLULOSE MESURÉE DANS REGAIN CONTENANT LA PLUS FAIBLE QUANTITÉ DE PVC.....	105
TABLEAU 13 : RAPPORT DES SIGNAUX CHLORE ET HYDROGÈNE MESURÉS AVEC LA DIODE DANS LA PORTE.....	106
FIGURE 15 : VARIATION DE $S_{\text{Cl}}/S_{\text{H}}$ EN FONCTION DE LA TENEUR EN PVC.....	106
FIGURE 16 : VARIATION DU RAPPORT DES SIGNAUX CALCULÉS PAR MCNP (F5 PUIS F8).....	108
FIGURE 17 : VARIATION DU COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE I.N.A. K_{ET} CALCULÉ PAR MCNP AVEC LA TENEUR EN PVC DE LA MATRICE.....	110

<u>TABLEAU 14 : PARAMÈTRES DE LA FONCTION D'INTERPOLATION POUR LES K_{ET} À DIFFÉRENTES DENSITÉS.</u>	111
<u>FIGURE 18 : VARIATION DES COEFFICIENTS DE RÉGRESSION AVEC LA DENSITÉ DE LA MATRICE.</u>	112
<u>TABLEAU 15 : INCERTITUDES RELATIVES (%) SUR LE RAPPORT DES SIGNAUX EXPÉRIMENTAUX S_{Cl}/S_H.</u>	114
<u>TABLEAU 16 : INCERTITUDES RELATIVES (%) SUR LA DÉTERMINATION DE LA TENEUR EN PVC DE LA MATRICE.</u>	115
<u>TABLEAU 17 : INCERTITUDES RELATIVES (%) SUR LA DÉTERMINATION DU K_{ET} EN FONCTION DE LA TENEUR EN PVC ET DE LA DENSITÉ DE LA MATRICE POUR LE DOUBLET DU CHLORE À 786/788 KEV.</u>	115
<u>TABLEAU 18 : INCERTITUDES RELATIVES SUR LA DÉTERMINATION DU K_{ET} (%) EN FONCTION DE LA TENEUR EN PVC ET DE L'ÉNERGIE DES RAIES DU CHLORE POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,2 G/CM³.</u>	116
<u>TABLEAU 19 : DISPERSION DU RAPPORT S_{Cl}/S_H POUR LES MATRICES CONTENANT UNIQUEMENT DU PVC.</u>	116
<u>TABLEAU 20 : INCERTITUDES SUR LA DÉTERMINATION DE LA TENEUR EN PVC POUR DIFFÉRENTES ÉNERGIES.</u>	117
<u>TABLEAU 21 : COEFFICIENTS DE RÉGRESSION OBTENUS PAR WINREG POUR LES ABAQUES D'ÉTALONNAGE RELIANT K_{ET} À LA TENEUR EN PVC.</u>	118
<u>TABLEAU 22 : VARIATION DE L'INCERTITUDE σ_{CORR} SUR LE COEFFICIENT K_{CORR} EN FONCTION DE LA TENEUR EN PVC ET DE LA DENSITÉ DE LA MATRICE.</u>	119
<u>TABLEAU 23 : VARIATION DE L'INCERTITUDE SUR LE COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE DE RÉFÉRENCE AVEC LA DENSITÉ DANS LE CAS DE LA MATRICE PÉNALISANTE (100 % PVC).</u>	120
<u>TABLEAU 24 : MASSE ANNONCÉE DANS LE CAS LE PLUS PÉNALISANT POUR DIFFÉRENTES DENSITÉS.</u>	121
<u>TABLEAU 25 : VARIATION DE L'INCERTITUDE DUE À LA COMPOSITION DE LA MATRICE AVEC LA DENSITÉ DANS UNE MATRICE CELLULOSE.</u>	122
<u>TABLEAU 26 : COMPARAISON DES MASSES EN INTERPRÉTATION PÉNALISANTE ET INTERPRÉTÉES AVEC LE COEFFICIENT D'ÉTALONNAGE DES MATRICES COMPOSÉES UNIQUEMENT DE CELLULOSE.</u>	122
<u>TABLEAU 27 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION.</u>	124
<u>FIGURE 19 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,05 G/CM³.</u>	125
<u>FIGURE 20 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,10 G/CM³.</u>	125
<u>FIGURE 21 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,20 G/CM³.</u>	126
<u>FIGURE 22 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,30 G/CM³.</u>	126
<u>FIGURE 23 : COMPARAISON DES MASSES PÉNALISANTES ET DES MASSES OBTENUES PAR LA MÉTHODE DE CORRECTION POUR UNE MATRICE DE DENSITÉ 0,40 G/CM³.</u>	127
<u>FIGURE 24 : RÉCAPITULATION DE L'APPORT DE LA MÉTHODE DE CORRECTION PROPOSÉE EN TERMES DE RÉDUCTION DE L'INCERTITUDE ASSOCIÉE À L'INTERPRÉTATION DU SIGNAL NEUTRONIQUE I.N.A.</u>	127

Conclusion et perspectives

Les travaux présentés dans ce mémoire de thèse contribuent à l'amélioration de l'interprétation du signal neutronique issu de l'Interrogation Neutronique Active des colis de déchets potentiellement incinérables. Ils permettent d'obtenir une réduction des incertitudes provenant des effets de matrice lors de la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.) dans une grande partie du domaine de compositions et de densités étudié. Ce domaine couvre **les matrices homogènes** de 118 litres entièrement remplies constituées d'un mélange de cellulose et de PVC (PolyChlorure de Vinyle) ou uniquement l'un de ces matériaux pour des densités inférieures à $0,40 \text{ g/cm}^3$.

L'idée innovante pour réduire l'incertitude sur la masse de matière fissile annoncée est d'utiliser les potentialités de la spectrométrie des rayonnements gamma de capture émis pour identifier et quantifier les composants de la matrice. Les deux matériaux d'intérêt étudiés dans cette thèse sont l'hydrogène et le chlore.

D'une part, la détection de signaux gamma provenant du chlore permet de différencier les matrices chlorées contenant du PVC des matrices non-chlorées contenant de la cellulose.

D'autre part, l'utilisation du rapport du signal net S_{Cl} du doublet du chlore à 786/788 keV au signal net S_H de la raie de l'hydrogène à 2223 keV permet de déterminer la teneur en PVC des matrices mixtes avec une incertitude constante de 15 % sur toute la gamme des densités étudiée.

Cependant, une incertitude importante sur le paramètre choisi S_{Cl} / S_H provient de sa dispersion avec la densité de la matrice. Cette dispersion a pu être observée expérimentalement sur la gamme de densité considérée [$0 - 0,4 \text{ g/cm}^3$]. Cela entraîne une augmentation importante de l'incertitude sur la masse corrigée annoncée pour les matrices de densités supérieures à $0,25 \text{ g/cm}^3$ contenant peu de PVC.

Pour atteindre ce résultat, trois grandes étapes ont été nécessaires :

- 1) L'étude de la faisabilité de l'obtention de signaux utiles auprès de la cellule d'I.N.A. existante PROMETHEE 6 :

Les conclusions de cette étude montrent l'impossibilité de détecter l'hydrogène provenant des matrices dans la cellule PROMETHEE 6. Le signal net sous la raie à 2223 keV de l'hydrogène reste important en l'absence de matrice et provient en particulier du polyéthylène constitutif de la cellule de mesure. De plus, le signal hydrogène mesuré diminue en présence d'une matrice. Par conséquent, la méthode de correction proposée ne peut être appliquée à partir des mesures de spectrométrie gamma réalisées simultanément à l'irradiation neutronique dans une telle cellule.

- 2) Le dimensionnement par calcul à l'aide du code de calcul Monte Carlo MCNP d'une cellule de mesure dédiée à la détection des rayonnements gamma de capture provenant de colis de 118 litres :

Une cellule dédiée, baptisée REGAIN (REcherche des Gamma d'Activation et d'Irradiation Neutronique), a été dimensionnée afin d'obtenir un signal hydrogène provenant des matrices. Dans ce but et dans la mesure du possible, l'hydrogène a été proscrit des matériaux constitutifs de la nouvelle cellule.

Dans le cadre d'une mise en œuvre industrielle, cela implique de tenir compte dans la conception de la cellule I.N.A. des nécessités de la spectrométrie gamma, en proscrivant

l'utilisation de l'hydrogène dans les matériaux constitutifs de la cellule, ou au moins la stricte limitation de son emploi. L'alternative est alors la suivante : soit la présence restreinte d'hydrogène permet tout de même d'obtenir simultanément à la mesure par I.N.A. un signal utile de spectrométrie gamma provenant de l'hydrogène des matrices, soit un autre poste de mesure dédié est alors requis.

- 3) Valider la conception de la cellule dédiée et mettre en œuvre la méthode de correction à partir des résultats expérimentaux obtenus.

Les études réalisées auprès de la cellule REGAIN ont montré son adéquation aux besoins requis dans ces travaux de thèse : obtention d'un signal hydrogène et d'un signal chlore provenant des constituants des matrices avec des niveaux de signaux utiles suffisants. Dans ce but, une émission du générateur de neutrons en mode continu permet, malgré le niveau élevé du fond Compton et la présence de raies provenant de réactions parasites (diffusions inélastiques notamment), d'obtenir ces signaux utiles. La méthode de mesure expérimentée, basée sur l'utilisation d'une porte temporelle d'acquisition pour discriminer les réactions de capture radiative des diffusions inélastiques notamment, a montré tout son intérêt pour l'abaissement du niveau de bruit de fond gamma (raies parasites et fond Compton associé). Les inconvénients qu'elle entraîne en termes de gestion du temps mort variable limitent cependant son utilisation dans notre cas.

La mise en œuvre expérimentale de la spectrométrie gamma active auprès de la cellule REGAIN a permis de mettre en évidence les points suivants :

3a) l'utilisation d'une porte temporelle d'acquisition :

- permet de séparer les contributions des réactions dues aux neutrons rapides de celles dues aux neutrons thermiques en choisissant la zone temporelle pour laquelle chacun de ces types de réactions est favorisé : pendant l'impulsion du générateur de neutrons pour les neutrons rapides, entre les impulsions pour les neutrons épithermiques et thermiques. Le niveau de bruit de fond actif pour la détection des rayonnements gamma de capture est ainsi réduit ;
- exige la gestion d'un temps mort variable dans le temps ;
- n'est pas strictement nécessaire pour obtenir des signaux utiles gamma : une irradiation en mode continu est suffisante pour obtenir ce résultat.

L'utilisation d'une porte temporelle d'acquisition, qui peut se justifier du point de vue de la réduction du bruit de fond, n'a pas permis d'obtenir de meilleurs niveaux de signal qu'une simple irradiation en continu. La gestion d'un fort taux de comptage doublée d'un temps mort variable a conduit à utiliser le générateur de neutrons en mode continu et à acquérir de même le signal gamma en continu.

3b) la spectrométrie gamma active sur des colis de 118 litres :

- est réalisable dans REGAIN avec un détecteur germanium soumis à une irradiation neutronique sous réserve de prendre la précaution de le protéger du flux de neutrons rapides et de limiter le nombre de réactions des neutrons thermiques avec le germanium du détecteur, en utilisant un matériau idoine, à

base de lithium plutôt qu'à base de bore (générateur d'un fort bruit de fond gamma) ;

- informe sur la nature de la matrice (identification), ainsi que la teneur en PVC de matrices mixtes contenant un mélange de PVC et de cellulose (quantification relative) ;
- permet d'obtenir une variation monotone du niveau de signal de capture avec la densité de la matrice quand le détecteur est placé dans la porte de la cellule. La position du détecteur germanium influe sur le niveau de signal mesuré et sur la variation du signal utile avec la densité de la matrice. Notamment, les effets de matrice combinés au transport photonique dans la matière impliquent de choisir l'emplacement du détecteur dans un périmètre proche de la zone pour laquelle le nombre de captures dans la matrice est le plus élevé. Ce périmètre est situé du côté de la matrice proche de la source de neutrons. Le compromis entre la durée de vie de la diode et le niveau de signal utile attendu est donc à optimiser ;
- confirme les effets de matrice observées en I.N.A. dans les matrices concernées dans PROMETHEE 6 ;
- permet la définition d'une méthode de correction des effets de matrices applicable à la mesure par I.N.A. dans le cas de colis homogènes et entièrement remplis dans la cellule de mesure PROMETHEE 6.

Les résultats obtenus permettent de mieux interpréter le signal neutronique issu de l'I.N.A. et de choisir un coefficient d'étalonnage corrigé donnant une masse de contaminant plus proche de la valeur réellement présente dans la matrice. L'incertitude sur la masse de contaminant annoncée est réduite par rapport à l'interprétation pénalisante réalisée sans connaissance de la composition de la matrice, et ce sur une grande partie du domaine de compositions et de densités étudié (cf. chapitre 4, figures 19 à 24).

La masse de contaminant annoncée est non seulement plus précise, mais également plus proche de la masse réellement présente dans le colis. La prise en compte du coefficient d'étalonnage I.N.A. corrigé permet en effet dans de nombreux cas de minorer la masse annoncée par rapport à la masse non-corrigée.

Dans le cas d'une matrice reconnue comme étant composée uniquement de cellulose, l'interprétation du signal neutronique conduit dans ces conditions à la valeur la plus précise de la masse réellement présente dans le colis.

Dans le cas d'une matrice reconnue comme étant constituée uniquement de PVC, l'incertitude est réduite mais la masse annoncée est supérieure à la masse obtenue en interprétation pénalisante.

Dans le cas d'une matrice contenant un mélange de cellulose et de PVC, l'incertitude est réduite et la masse annoncée est inférieure ou égale à la masse obtenue en interprétation pénalisante.

Ces améliorations sont cependant limitées, notamment du fait de la variation du rapport S_{Cl} / S_H en fonction de la densité pour une composition de matrice donnée. Cette dispersion a été mise en évidence expérimentalement dans le cas de matrices composées uniquement de PVC. Dans ce cadre, il serait souhaitable d'obtenir la loi de variation de la dispersion du paramètre de correction S_{Cl} / S_H en fonction de la densité pour différentes teneurs en PVC.

*
* *

La faisabilité de la méthode de correction envisagée a été montrée expérimentalement auprès de la cellule REGAIN. Son efficacité, bien qu'actuellement limitée du fait de la variation du paramètre de correction choisi avec la densité des matrices, encourage toutefois à poursuivre les études. Plusieurs directions peuvent être envisagées dans ce cadre.

Dans un premier temps, il serait souhaitable d'élargir le nombre de matériaux d'intérêt, afin de remplacer le chlore par un autre élément absorbant (comme le bore par exemple, s'il n'est pas présent dans le capot de protection autour de la diode germanium). De même, la méthode gagnerait à être élargie à d'autres rapports de signaux dans le cas de matrices comportant plus de deux éléments d'intérêt ayant des propriétés sur le flux neutronique interrogateur.

Une étude en fonction du niveau de remplissage de la matrice peut également être menée, en restant dans l'hypothèse d'une matrice homogène. Le niveau de remplissage influe en effet directement sur la densité apparente mesurable par pesée, ainsi que sur le flux interrogateur et sur le rendement de détection gamma.

L'objectif à plus ou moins long terme étant de prendre en compte les effets de matrice pour une composition du colis inconnue, il est indispensable d'élargir l'étude à l'influence de l'inhomogénéité de la matrice. La cellule REGAIN pourrait être utilisée de manière efficace dans ce type d'étude en utilisant les deux canaux d'instrumentations supplémentaires prévus lors de la conception de part et d'autre du canal central. Cela permettrait une visée par tranche du colis, en utilisant au besoin un collimateur (dans un matériau adapté), afin d'obtenir une information sur l'homogénéité axiale du colis. D'autre part, afin de limiter les effets d'une éventuelle inhomogénéité radiale, il pourrait être envisagé d'équiper la cellule REGAIN d'un plateau tournant pour la mise en rotation du fût et ainsi moyenner les contributions des émissions des gamma de capture.

Un autre point concerne la gestion du temps mort variable dans le cadre de l'utilisation d'une porte temporelle d'acquisition. Cette méthode d'acquisition a prouvé son intérêt dans la diminution du bruit de fond actif, en autorisant la sélection de plages temporelles pendant lesquelles la production du signal utile est favorisée. Il serait particulièrement intéressant de se doter des moyens d'appréhender la variation de ce temps mort sur des intervalles de temps plus courts. Cela ouvrirait la voie à la recherche d'un signal utile dans une zone proche de la fin de la bouffée de neutrons. Cela ouvrirait également la voie à la détection de rayonnements gamma provenant d'autres types de réactions (diffusions inélastiques notamment).

La spectrométrie gamma active apparaît donc encore riche en possibilités dans le cadre de la correction des effets de matrice.

REFERENCES

- [1] T. GOZANI
Active Non-Destructive Assay of Nuclear Materials
NUREG/CR-0602 (1981)
- [2] D. REILLY
Passive Non Destructive assay of Nuclear Materials
NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732 (1991)
- [3] B. PEROT, P. PIN & al.
Self-induced X-Ray Fluorescence : An Innovative Method For Uranium
Characterization in Bituminous Waste Drums
4th International Seminar on Radioactive Waste Products, RADWAP'02, 22-26
September 2002, Würzburg, Germany
- [4] F. JALLU
Double interrogation simultanée neutrons et photons utilisant un accélérateur
d'électrons pour la caractérisation séparée des actinides dans les déchets radioactifs
enrobés
Thèse de l'Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand, soutenue le 24 septembre
1999.
- [5] J-L. PETTIER
Determination of Physical Homogeneity by Gamma-ray Imaging
Nuclear Technology, Vol. 115, pp 178-191, August 1996.
- [6] J-L. PETTIER, D. ECK, R. THIERRY
High Energy X-Ray Imagery on Large or Dense Objects : Definition and
Performances Studies of Measurements devices by Simulation
Emerging Technology Non-Destructive Testing (ETNDT 2003), Thessoloniki, Greece
- [7] JEF-PC
Logiciel de l'OCDE/base de données de l'AEN
Version 1.0 du 01/11/1994
- [8] F. JALLU
Etat de l'art des méthodes utilisées en correction des effets de matrice pour
l'interrogation neutronique active (I.N.A)
Rapport Technique CEA (2000)
- [9] J.T. CALDWELL & al.
Calibration, matrix corrections and verification activities with the Los Alamos second
generation combined passive and active neutron assay system
LA-Q2-TN-B5-102 (1985)

- [10] N.J. NICHOLAS & al.
Capability and limitation study of the DDT passive-active neutron waste assay instrument
LA-12237-MS (1992)
- [11] K. USUI
Estimation of homogeneous matrix correction method for transuranic isotop measurement in waste using an active neutro technique
ESARDA proceedings, Ispra, Italie (1997) p. 601-613
- [12] R.J. ESTEP & al.
A passive-active neutron device for assaying remote-handled transuranic waste
- [13] B. PEROT
Effets de matrice et correction pour la mesure par interrogation neutronique active avec générateur de neutrons de 14 MeV
Note interne CEA (1996)
- [14] J. F. BRIESMEISTER
MCNP – A General Monte Carlo N-Particles Transport Code, Version 4C
LA-13709-M (2000)
- [15] F. JALLU & al.
Characterization of alpha low level waste in 118 litre drums by passive and active neutron measurements in the PROMETHEE assay sytem
4th International Seminar on Radioactive Waste Products, RADWAP'02, 22-26 September 2002, Würzburg, Germany
- [16] C. PASSARD, J. LORIDON, A. MARIANI, H. RECROIX
PROMETHEE 6 : Synthèse des performances du dispositif de mesure pour différentes matrices
Note interne CEA (1998)
- [17] J-L. MA
Interrogation neutronique et spectrométrie gamma. Catalogue des principales réactions neutroniques utiles pour la caractérisation d'éléments chimiques simples
Note interne CEA (2002)
- [18] J-L. MA
Dispositif MEC : interprétation quantitative des spectres de capture
Note interne CEA (1998)
- [19] E.G. KESSLER & al.
Gamma-ray energies from the reaction $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$
Physical Review C Vol. 32, n°2 (1985)
- [20] B. KRUSCHE, K.P. LIEB
Gamma-ray energies and ^{36}Cl level scheme from the reaction $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$
Nuclear Physics A 386 (1982) 245-268

- [21] A.M.J. SPITS, J. KOPECKY
The reaction $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ studied with non-polarized and polarized thermal neutrons
Nuclear Physics A 264 (1976) 63-92
- [22] G.L. MOLNAR & al.
Accurate absolute intensities for the $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$ reaction gamma-ray standard
Poster presented at the 5th Int. Topical Meeting on Industrial Radiation and
Radioisotope Measurement application IRRMA-V
Bologna, Italy, 9-14 June 2002
- [23] A. LONE & al.
Prompt gamma rays from thermal neutron capture
Atomic Data And Nuclear Data Tables, Vol. 26 (1981) 511-559
- [24] C. COCEVA & al.
Gamma intensity standard from thermal neutron capture in ^{35}Cl .
Nuclear Instruments and Methods A 378 (1996) 511-514
- [25] J-L. MA
Caractérisation de déchets par rayonnements de capture : premiers essais avec du
mercure
Note interne CEA (1998)
- [26] D. A. CLOSE & al.
The application of thermal neutron capture gamma rays to matrix identification in a
transuranic waste assay system based on an electron accelerator
Nuclear Instruments and Methods A 220 (1984) 531-536
- [27] A. MARIANI, B. PEROT, J. LORIDON
Interrogation neutronique avec générateur de neutrons pulsé : étude du bruit de fond
actif
Note interne CEA (1996)
- [28] P. MOURET
Analyse de matrices par activation neutronique
Rapport de stage au LDMN (1992)
- [29] G.F. KNOLL
Radiation Detection and Measurement, 3rd edition
J. Wiley & Sons (2000)
- [30] J-L. MA, N. GRI
Réglage d'une chaîne spectrométrique à fort taux de comptage
Note interne CEA (1996)
- [31] J-L. MA, F. JALLU
Caractérisation de matrices par rayonnement de capture : dimensionnement d'un
détecteur robuste
Note interne CEA (2000)

- [32] L. LOUBET
Etude de la tenue d'un détecteur germanium à haute température sous irradiation neutronique
Mémo interne CEA (1995)
- [33] C. PASSARD, A. MARIANI, J. ROMEYER-DHERBEY
Spécification d'une cellule de démonstration pour le contrôle à bas niveau des déchets alpha par Interrogation Neutronique Active
Note interne CEA (1996)
- [34] N. METROPOLIS, S. ULAM
The Monte Carlo method
Journal of the American Statistical Association, 44 (247), 335-341(1949)
- [35] T.E. BOOTH
A Sample Problem for Variance Reduction in MCNP
LA – 10363 – MS (1985)
- [36] B. PEROT, H. VIDAL, A. WEBER, P. FUNK
Modélisation à l'aide de MCNP de mesures de spectrométrie gamma effectuées avec le dispositif « PLUM »
Note interne CEA (2002)
- [37] A. MARIANI
PROMETHEE 6 : optimisation par simulation numérique de la cellule
Note interne CEA (1997)
- [38] J.H. HUBBELL, S.M. SELTZER
Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements $Z = 1$ to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest
U.S. Department of Commerce, NISTIR 5632 (1995)
- [39] G. BAUDRY
Caractérisation de matrices par rayonnements de capture : principe physique et systèmes associés
Note interne CEA (2001)
- [40] D. TRUBERT
Emission des rayonnements gamma prompts après capture neutronique : influence des paramètres physico-chimiques et applications analytiques
Thèse soutenue le 08/11/1990, Université Paris-Sud, Centre d'Orsay
- [41] Logiciel Visu
© A&M (Automatismes et Mesures)

- [42] Manuel d'utilisation du Générateur de Neutrons GENIE 16
Société SODERN

- [43] Logiciel WinReg v3.0
© Jean Debord
http://www.unilim.fr/pages_perso/jean.debord/winreg/winreg.htm

- [44] GT 11 : CETAMA "Méthodes Statistiques" – M. NEUILLY
Recommandations pour l'évaluation des incertitudes associées à une méthode de mesure.
Dossier CEA- CETAMA

- [45] M. NEUILLY et CETAMA
Précision du dosage de traces : répétabilité et limite de détection
LAVOISIER TECHDOC, 1996

- [46] B. PEROT
Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel
Thèse soutenue le 20/06/1996, Université Joseph Fourier, Grenoble 1

Annexe 1

Dimensionnement de la cellule REGAIN

Comme indiqué au chapitre 3, § 3, les paramètres dimensionnants de cette étude sont les suivants :

- le taux de capture dans la matrice doit être maximum,
- le flux de neutrons rapides dans la diode germanium doit être minimisé pour conserver les performances nominales du détecteur pendant la durée de fonctionnement choisie. Celle-ci est fixée arbitrairement à 1000 heures d'irradiation (pour une fluence maximum intégrée par la diode de 10^9 neutrons rapides/cm²). Cette valeur, relevée dans la littérature [32], a été déterminée expérimentalement sur un détecteur germanium planaire de type N. Cela correspond alors à une valeur du tally F2 de MCNP maximale de $2,8.10^{-6}$ n/cm²/neutron source pour une émission du générateur de neutrons égale à 10^8 n/s,
- le détecteur gamma doit être positionné de façon à maximiser son rendement de détection. Pour cela, un canal d'instrumentation permettant d'approcher la diode près de la matrice sera creusé dans la paroi opposée au générateur de neutrons,
- le critère prépondérant est le signal gamma attendu dans un pic d'intérêt : raie à 2223 keV de l'hydrogène, et raies du chlore.

1 Point de départ : la cellule PROMETHEE 6

La géométrie de départ à partir de laquelle ont été conduits les calculs est celle de la cellule PROMETHEE 6 existante (figure 1), dans laquelle est placée une matrice de PVC de densité 0,30 g/cm³.

Les résultats obtenus avec cette cellule sont les suivants :

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
25,8	67,6	6,6	0,0	9,65.10⁻⁷

Tableau 1a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le nombre total de captures calculé pour cette configuration de départ constitue la valeur de référence pour la suite de l'étude. Il vaut **9,65.10⁻⁷ capture/cm³/neutron source**.

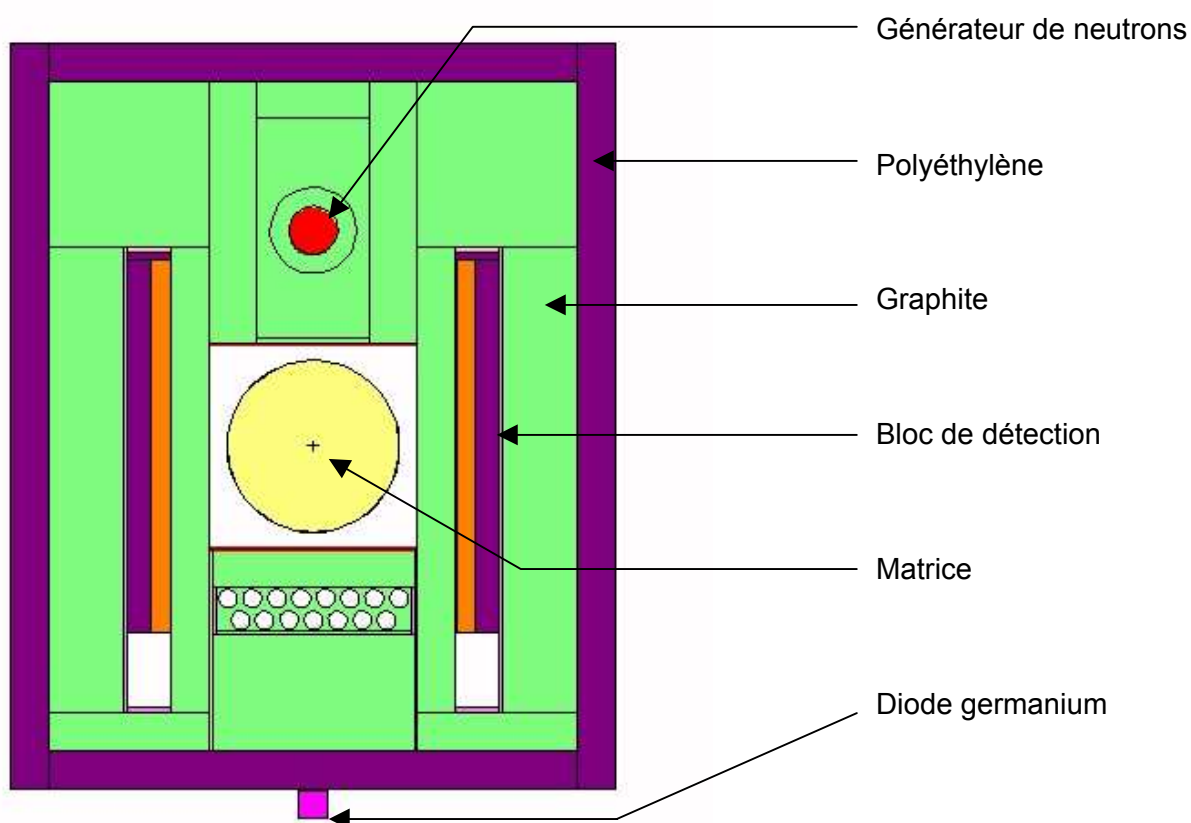


Figure 1 : Cellule PROMETHEE 6 existante (coupe horizontale).

La fluence de neutrons rapides représente 65,2 % du total des neutrons pénétrant dans la diode germanium placée en face avant de PROMETHEE 6 (cf. tableau 1b). La valeur de la fluence rapide est ici inférieure à la limite retenue pour 1000 heures de fonctionnement de la diode sous irradiation neutrons ($2,8 \cdot 10^{-6}$ n/cm²/neutron source). On peut donc utiliser dans ce cas le générateur de neutrons à son émission nominale de 10^8 n/s.

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
4,1	30,6	6,3	58,9	$1,30 \cdot 10^{-6}$	$8,48 \cdot 10^{-7}$

Tableau 1b : Répartition (%) de la fluence de neutrons dans la diode Ge en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le tableau 1c présente le rendement de détection calculé pour deux raies d'intérêt : celle de l'hydrogène à 2223 keV et une raie intense du chlore à 6110 keV.

Energie (keV)	Rendement (/gamma source)	Ecart-type (%)
2223	$9,98 \cdot 10^{-7}$	11,18
6110	$2,67 \cdot 10^{-6}$	6,84

Tableau 1c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

La mise en commun de ces données de calculs permet d'estimer le niveau du signal gamma dans la diode germanium. En effet, on a :

$$S(E_\gamma) = \Phi_n \cdot \rho(E_\gamma) \cdot I_\gamma \cdot \sum_{i=1}^{n_{\text{mailles}}} (\tau_i \cdot V_i)$$

Avec :

$S(E_\gamma)$: signal gamma (coups/seconde),

E_γ : énergie du gamma incident (keV),

Φ_n : émission du générateur de neutrons (neutrons/seconde),

$\rho(E_\gamma)$: rendement de détection de la diode germanium pour l'énergie E_γ (coup/gamma émis),

I_γ : intensité de la raie gamma d'énergie E_γ ,

n_{mailles} : nombre de mailles dans le volume de la matrice,

τ_i : nombre de captures sur l'élément concerné dans la maille i (cm^{-3} / neutron source),

V_i : volume de la maille i (cm^3).

Remarque : dans notre cas, les V_i sont tous égaux.

On a alors, avec environ 3% des captures se produisant sur l'hydrogène et 97% sur le chlore dans du PVC de densité $0,30 \text{ g/cm}^3$ et une émission du générateur de 10^8 n/s :

$$\begin{aligned} S(2223 \text{ keV}) &= 0,34 \text{ coup/seconde} \\ S(6110 \text{ keV}) &= 6,10 \text{ coups/seconde} \end{aligned}$$

Remarque :

Ces chiffres ne constituent qu'une estimation du signal attendu, la validation du schéma de calcul n'ayant pas été réalisée. Ils sont néanmoins utiles pour une comparaison des performances des différentes géométries calculées ensuite.

2 Première étape : modification de la cellule de départ

2.1 Retrait du polyéthylène

La première étape consiste à étudier une cellule aux dimensions de la cellule PROMETHEE 6 dont les parois sont entièrement en graphite (figure 2). Le revêtement externe en polyéthylène est supprimé et les blocs de détection sont remplacés par du graphite massif. La diode est placée dans un canal d'instrumentation en face avant de la cellule.

Le tableau 2a présente la répartition du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

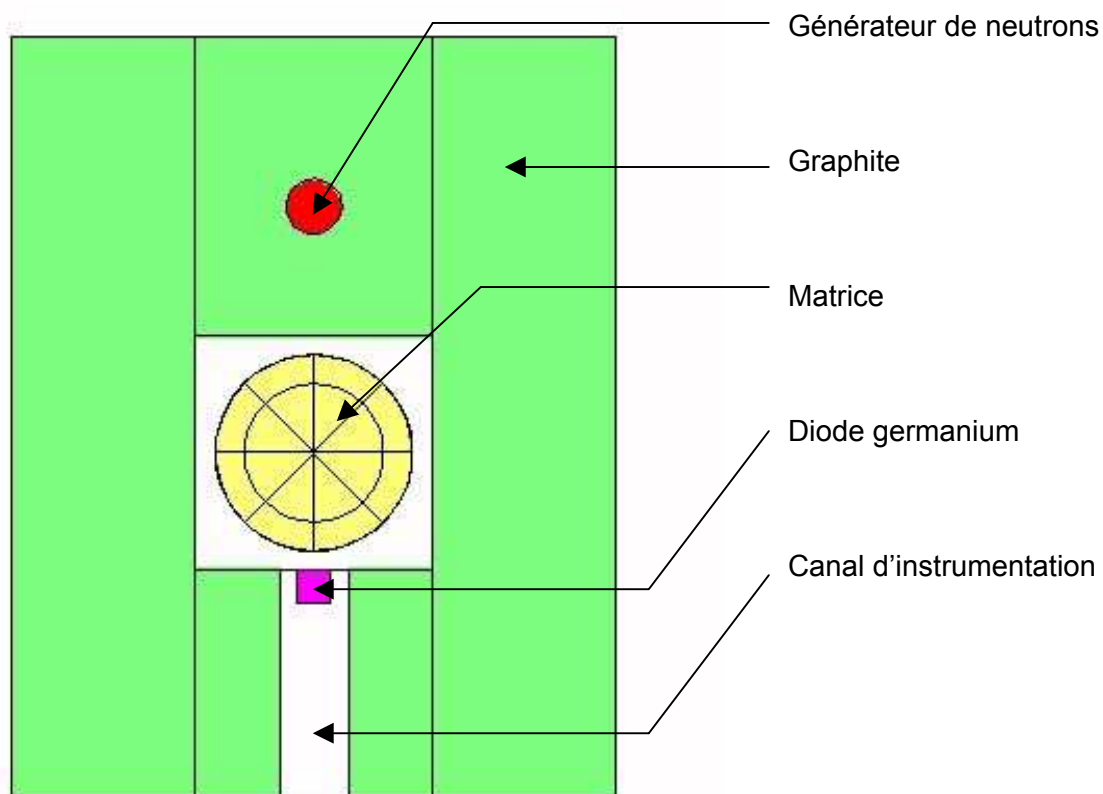


Figure 2 : Cellule PROMETHEE 6 modifiée (coupe horizontale).

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
29,0	65,8	5,2	0,0	1,41.10⁻⁶

Tableau 2a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le taux de capture global dans la matrice PVC de densité 0,30 g/cm³ est 46 % plus élevé dans cette cellule en graphite que dans la cellule PROMETHEE 6.

[0 – 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
5,8	36,4	19,2	38,4	1,78.10⁻⁵	1,03.10⁻⁵

Tableau 2b : Répartition (%) de la fluence de neutrons en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

La fluence de neutrons rapides représente maintenant 57,6 % de la fluence totale des neutrons pénétrant dans la diode germanium placée dans un canal d'instrumentation au milieu de la

face avant de la cellule PROMETHEE 6 modifiée. Le niveau de flux rapide dans la diode germanium est tel qu'il limite la durée d'utilisation de la diode à 270 h. Si on veut imposer une durée de 1000 h, l'émission du générateur doit être limitée à $2,70.10^7$ n/s.

Energie (keV)	Rendement (/ gamma source)	Ecart-type (%)
2223	$5,51.10^{-4}$	6,47
6110	$2,54.10^{-4}$	9,53

Tableau 2c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

Le rendement de détection est plusieurs centaines de fois plus élevé avec la diode germanium placée au plus près de la matrice dans un canal d'instrumentation que dans la cas de la cellule PROMETHEE 6 avec la diode à l'extérieur de la cellule. On s'attend donc à ce que le gain sur le signal utile soit important.

On a dans cette configuration, pour une émission de $2,70.10^7$ n/s :

$$S(2223 \text{ keV}) = 74 \text{ coups/seconde}$$

$$S(6610 \text{ keV}) = 228 \text{ coups/seconde}$$

Le signal H est amélioré d'un facteur 218.

Le signal Cl est amélioré d'un facteur 37.

2.2 Optimisation de la position de la diode germanium dans le canal d'insertion

La diode a été placée successivement dans différentes positions, en retrait par rapport à la cavité de 0, 10, 20, 30, 40 et 54 cm dans le canal d'insertion. La position 0 correspond à la diode placée tout au fond du canal et 54 cm à la diode placée à l'extérieur de la cellule, contre la paroi externe.

Les calculs ont été réalisés ici dans la cellule PROMETHEE 6 modifiée « tout graphite » décrite au paragraphe précédent.

Retrait (cm)	0	10	20	30	40	54	54 (sans canal)
Fluence (n/cm ² /neutron source)	$1,78.10^{-5}$	$1,55.10^{-5}$	$1,30.10^{-5}$	$9,60.10^{-6}$	$5,41.10^{-6}$	$2,11.10^{-6}$	$6,89.10^{-7}$
Fluence rapide (n/cm ² /neutron source)	$1,03.10^{-5}$	$9,18.10^{-6}$	$5,49.10^{-6}$	$5,07.10^{-6}$	$2,54.10^{-6}$	$1,21.10^{-6}$	$2,89.10^{-7}$

Tableau 3a : Variation de la fluence de neutrons dans la diode germanium en fonction de sa position dans le canal d'insertion.

La variation de la fluence de neutrons rapides intégrée par la diode germanium indique qu'il est possible de gagner un facteur 10 environ sur la durée de vie de la diode en la plaçant à l'extrémité externe du canal d'insertion (retrait de 54 cm) plutôt qu'au plus près de la matrice (position 0). D'autre part, pour satisfaire au critère des 1000 heures de fonctionnement de la diode germanium ($2,8.10^{-6}$ n/cm²/neutron source), il est nécessaire de se placer à au moins 40 cm en retrait dans le canal d'insertion.

Retrait (cm)	0	10	20	30	40	54	54 (sans canal)
ρ (2223 keV)	$5,51.10^{-4}$	$2,24.10^{-4}$	$1,23.10^{-4}$	$7,72.10^{-5}$	$4,71.10^{-5}$	$2,50.10^{-5}$	$4,99.10^{-8}$
ρ (6110 keV)	$2,54.10^{-4}$	$1,06.10^{-4}$	$6,73.10^{-5}$	$4,67.10^{-5}$	$3,11.10^{-5}$	$1,77.10^{-5}$	$1,61.10^{-7}$

Tableau 3b : Variation du rendement de détection de la diode germanium en fonction de sa position dans le canal d'insertion.

L'étude présentée dans le tableau 3b montre l'intérêt de placer la diode dans un canal d'insertion au plus près de la matrice. Le gain est d'un facteur 22 sur le rendement de détection de la raie de l'hydrogène et de 15 sur la raie à 6110 keV du chlore entre la position 0 au plus près du fût et la position en retrait de 54 cm, à l'extérieur de la cellule.

L'utilité d'un canal d'insertion est démontrée par la faible valeur du rendement de détection dans le cas de la diode placée contre une paroi en graphite plein. Le rendement de détection est en effet divisé par 500 pour la raie de l'hydrogène et par 110 pour la raie du chlore quand le canal d'insertion est rempli de graphite.

La comparaison des tableaux 3a et 3b montre que rapprocher la diode de la matrice par le biais d'un canal d'insertion conduit à augmenter la fluence de neutrons rapides intégrée par la diode mais à augmenter de façon encore plus importante le rendement de détection et donc le signal gamma utile. Dans le reste de l'étude, le choix retenu consiste à placer la diode au plus près, et à évaluer la durée de vie de la diode correspondante pour une émission de 10^8 n/s, ainsi que l'émission maximale admissible pour faire fonctionner la diode pendant 1000 heures.

2.3 Deuxième étape : variation de l'épaisseur des parois latérales et avant

Cette étape consiste à diminuer l'épaisseur des parois latérales et avant. Pour des raisons de symétrie, l'épaisseur des deux parois latérales est identique. Pour respecter la contrainte de dimension, les parois latérales ne peuvent excéder 40 cm de large.

Epaisseur avant (cm)	Epaisseur latérale (cm)			
	40	30	20	10
40	$1,41.10^{-6}$	$1,32.10^{-6}$	$1,16.10^{-6}$	$8,65.10^{-7}$
30	$1,41.10^{-6}$	$1,32.10^{-6}$	$1,15.10^{-6}$	$8,59.10^{-7}$
20	$1,35.10^{-6}$	$1,28.10^{-6}$	$1,12.10^{-6}$	$8,39.10^{-7}$
10	$1,30.10^{-6}$	$1,23.10^{-6}$	$1,08.10^{-6}$	$8,17.10^{-7}$

Tableau 4 : Variation du taux de capture (cm^{-3} par neutron émis) en fonction des épaisseurs latérales et avant de la cellule.

Le taux de capture diminue avec l'épaisseur des parois latérales et avant.

Le choix définitif de l'épaisseur des parois latérales et avant est fait au paragraphe suivant.

2.4 Troisième étape : variation de l'épaisseur du toit et du plancher

L'épaisseur du toit et l'épaisseur du plancher sont fixées à la même valeur, pour des raisons de symétrie de la cellule. L'épaisseur varie entre 30 cm et 10 cm, pour des épaisseurs latérales et avant de 10, 20 et 30 cm.

Epaisseur avant (cm)	Epaisseur latérale (cm)	Epaisseur toit/plancher (cm)				
		30	25	20	15	10
30	30	$1,32 \cdot 10^{-6}$	$1,30 \cdot 10^{-6}$	$1,26 \cdot 10^{-6}$	$1,19 \cdot 10^{-6}$	$1,11 \cdot 10^{-6}$
20	20	$1,15 \cdot 10^{-6}$	$1,13 \cdot 10^{-6}$	$1,10 \cdot 10^{-6}$	$1,05 \cdot 10^{-6}$	$9,82 \cdot 10^{-7}$
10	10	$8,33 \cdot 10^{-7}$	$8,26 \cdot 10^{-7}$	$8,08 \cdot 10^{-7}$	$7,77 \cdot 10^{-7}$	$7,32 \cdot 10^{-7}$

Tableau 5 : Variation du taux de capture (cm^{-3} par neutron émis) en fonction de l'épaisseur du plancher et du toit.

Le taux de capture diminue avec les épaisseurs du toit et du plancher.

Les épaisseurs latérales, avant, du toit et du plancher sont maintenant prises égales à 20 cm. Cette valeur représente un bon compromis entre le taux de capture dans la matrice (qui reste supérieur à PROMETHEE 6 actuelle) et l'encombrement de la cellule.

3 Quatrième étape : variation de l'épaisseur de la paroi arrière et position du générateur de neutrons

3.1 Impact sur le taux de capture

Il s'agit ici d'optimiser l'épaisseur de la paroi arrière de la cellule (qui contient le générateur) et la position du générateur de neutrons.

Le taux de capture augmente avec l'épaisseur de la paroi arrière jusqu'à une épaisseur d'environ 60 cm. Au-delà, on observe un effet de saturation pour des valeurs du retrait du générateur de 10 cm à 30 cm.

Pour une épaisseur de la paroi arrière donnée, le taux de capture est plus élevé quand le générateur est plus proche de la cavité contenant le fût.

Retrait du générateur (cm)	Epaisseur de la paroi arrière (cm)				
	30	40	50	60	70
10	$1,45 \cdot 10^{-6}$	$1,64 \cdot 10^{-6}$	$1,72 \cdot 10^{-6}$	$1,76 \cdot 10^{-6}$	$1,78 \cdot 10^{-6}$
20	$9,76 \cdot 10^{-7}$	$1,30 \cdot 10^{-6}$	$1,48 \cdot 10^{-6}$	$1,48 \cdot 10^{-6}$	$1,50 \cdot 10^{-6}$
30	X	$8,31 \cdot 10^{-7}$	$1,07 \cdot 10^{-6}$	$1,17 \cdot 10^{-6}$	$1,21 \cdot 10^{-6}$
40	X	X	$6,64 \cdot 10^{-7}$	$8,30 \cdot 10^{-7}$	$9,00 \cdot 10^{-7}$
50	X	X	X	$5,02 \cdot 10^{-7}$	$6,15 \cdot 10^{-7}$

Tableau 6 : Variation de l'épaisseur de la paroi arrière et du retrait du générateur.

D'autre part, la variation de l'épaisseur de la paroi arrière et du retrait du générateur a une influence sur le niveau de flux thermique atteint dans la matrice. Le tableau 7 présente les résultats obtenus pour différents couples épaisseur arrière / retrait générateur. Rappelons que la matrice étudiée est une matrice de PVC de densité $0,30 \text{ g/cm}^3$.

D'après les données du tableau 7, le flux de neutrons dans la matrice est d'autant mieux thermalisé que la paroi arrière est épaisse. De même, plus le générateur est en retrait par rapport à la cavité interne de la cellule, meilleure est la thermalisation dans la matrice.

Epaisseur arrière (cm)	Retrait générateur (cm)	[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]
30	10	22,84	66,94	10,13	0,09
30	20	23,28	67,33	9,38	0,07
40	10	23,40	67,04	9,48	0,08
40	20	24,19	67,47	8,36	0,06
40	30	25,14	67,44	7,38	0,05
50	10	23,89	66,85	9,06	0,08
50	20	25,24	67,21	7,51	0,05
50	30	26,27	67,26	6,35	0,04
50	40	27,55	66,91	5,39	0,03
60	10	24,04	66,97	8,91	0,07
60	20	25,24	67,21	7,51	0,05
60	30	26,88	67,12	5,96	0,04
60	40	28,34	66,98	4,65	0,03
60	50	29,36	66,85	3,77	0,02
70	10	24,25	68,60	9,59	0,08
70	20	25,44	67,11	7,40	0,05
70	30	27,10	67,10	5,77	0,04
70	40	28,95	66,65	4,37	0,02
70	50	30,04	66,66	3,28	0,02

Tableau 7 : Variation de la répartition (%) en énergie du flux dans la matrice.

3.2 Impact sur le flux rapide dans la diode germanium

Le flux rapide [1 keV – 14 MeV] dans la diode germanium est indépendant de l'épaisseur de la paroi arrière. En effet, la figure 3 montre des courbes confondues pour les différentes valeurs de l'épaisseur arrière.

Seul le retrait du générateur, et donc la distance entre la source de neutrons et la diode germanium, influe sur ce paramètre.

Compte tenu des données des § 3.7.1 et 3.7.2, l'épaisseur de la paroi arrière est fixée à 50 cm et le retrait du générateur est pris égal à 30 cm.

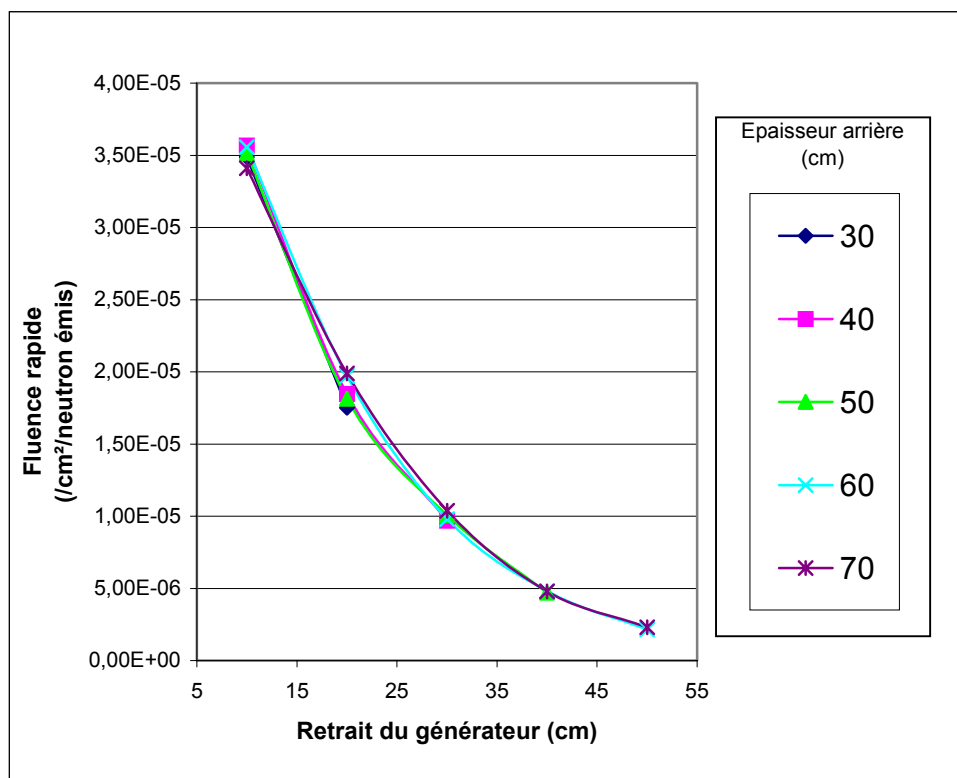


Figure 3 : Variation de l'épaisseur arrière et du retrait du générateur sur la fluence rapide dans la diode germanium ($E_n > 1$ keV).

4 Position du Générateur de neutrons

4.1 Générateur vertical

Dans toutes les études présentées précédemment dans cette note, le générateur de neutrons a été modélisé de façon simple en plaçant à l'emplacement du générateur un cylindre vertical de composition représentative de la composition moyenne des éléments de celui-ci.

Les dimensions retenues pour la cellule sont les suivantes :

Epaisseur des parois latérales et avant :	20 cm
Epaisseur du plafond et du plancher :	20 cm
Epaisseur de la paroi arrière :	50 cm
Retrait du générateur :	30 cm

Dans ces conditions, avec le générateur de neutrons placé verticalement les performances attendues sont présentées dans les tableaux 8a, 8b et 8c.

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
25,7	67,5	6,9	0,0	9,84.10⁻⁷

Tableau 8a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le taux de capture dans la matrice est essentiellement dû à des neutrons d'énergie inférieure à 1 eV (93,5 %). Cette configuration permet d'obtenir un taux de capture comparable à celui obtenu dans PROMETHEE 6.

[0 – 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
4,0	23,1	21,5	51,4	1,72.10⁻⁵	1,25.10⁻⁵

Tableau 8b : Répartition (%) de la fluence de neutrons dans la diode en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

La fluence des neutrons rapides représente 72,9 % de la fluence totale des neutrons pénétrant dans la diode germanium placée au plus près du fût au milieu de la paroi avant.

La fluence rapide dans la diode est d'un niveau tel qu'elle conduit à devoir limiter l'émission du générateur de neutrons à $2,22.10^7$ n/s pour satisfaire le critère des 1000 h d'irradiation.

Energie (keV)	Rendement (/ gamma source)	Ecart-type (%)
2223	$3,37.10^{-4}$	2,64
6110	$1,69.10^{-4}$	3,80

Tableau 8c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

On s'attend avec ce niveau d'émission au niveau de signal suivant dans les différentes raies d'intérêt :

$$S(2223 \text{ keV}) = 26 \text{ coups / seconde}$$

$$S(6110 \text{ keV}) = 87 \text{ coups / seconde}$$

4.2 Générateur vertical modélisé de façon plus réaliste

Jusqu'à ce stade de l'étude, les calculs présentés ont été réalisés avec une description simplifiée du générateur de neutrons. Un simple cylindre de composition moyenne rendant compte de la composition des matériaux du générateur de neutrons a été décrit.

Le générateur a donc ensuite été modélisé de façon plus réaliste à partir des plans mécaniques du GENIE 16 fournis par la société SODERN (figure 10).

Le générateur est positionné de façon à placer la source de neutrons à mi-hauteur du fût.

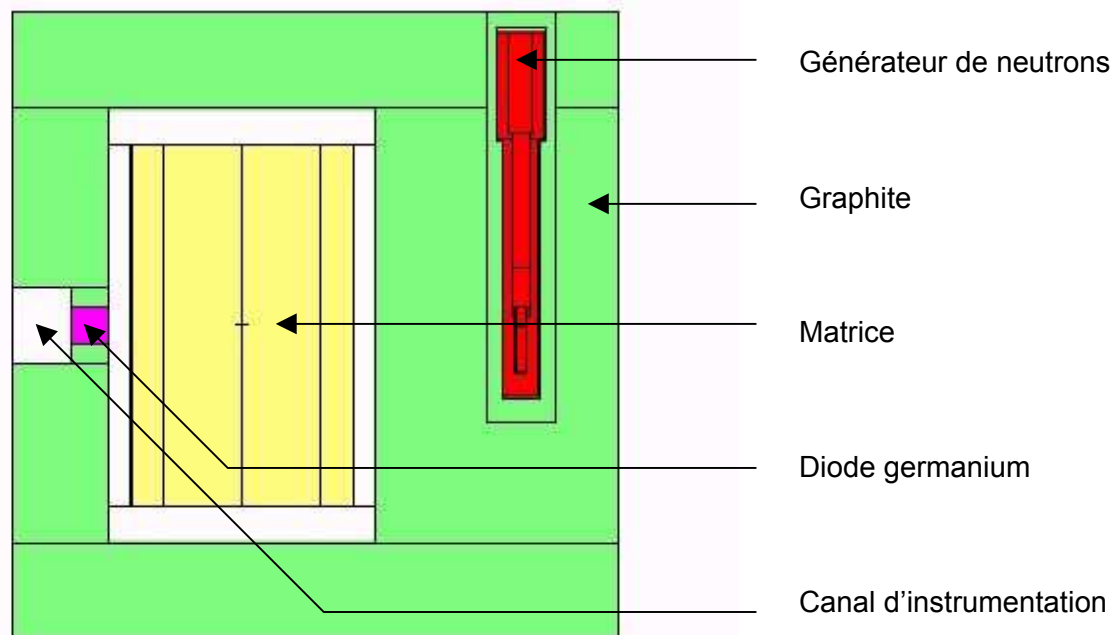


Figure 10 : Cellule avec un générateur de neutrons modélisé de façon plus réaliste (coupe verticale).

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
26,1	67,3	6,6	0,0	9,56.10⁻⁷

Tableau 9a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le taux de capture dans la matrice est essentiellement dû à des neutrons d'énergie inférieure à 1 eV (93,4 %).

[0 – 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
3,2	23,5	20,8	52,6	1,75.10⁻⁵	1,28.10⁻⁵

Tableau 9b : Répartition de la fluence de neutrons dans la diode en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

La fluence de neutrons rapides représente 73,4 % de la fluence de neutrons totale dans la diode germanium placée au plus près du fût au milieu de la paroi avant.

Energie (keV)	Rendement (/ gamma source)	Ecart-type (%)
2223	$3,44.10^{-4}$	1,78
6110	$1,64.10^{-4}$	2,58

Tableau 9c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

Le flux rapide dans la diode est d'un niveau tel qu'il conduit à devoir limiter l'émission du générateur de neutrons à $2,17.10^7$ n/s pour satisfaire le critère des 1000 h d'irradiation.

On s'attend pour cette émission au niveau de signal suivant dans les différentes raies d'intérêt :

$$S(2223 \text{ keV}) = 25 \text{ coups / seconde}$$

$$S(6110 \text{ keV}) = 80 \text{ coups / seconde}$$

La différence de signal par rapport au modèle simplifié du générateur est d'environ -4% sur le signal H et de -8% sur le signal Cl.

4.3 Générateur horizontal

Comme on l'a vu, dans une géométrie de cellule donnée, la position de la source de neutrons influe grandement sur le taux de capture dans la matrice et la fluence de neutrons rapides dans la diode. Afin de pouvoir faire varier cette position facilement, le générateur de neutrons a été placé à l'horizontale. La distance entre la source et la cavité peut alors être modifiée simplement en translatant le générateur dans son canal d'insertion.

Les paramètres géométriques de la cellule sont par ailleurs inchangés (figure 5).

Les performances sont alors les suivantes :

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
26,1	67,2	6,7	0,0	$1,00.10^{-6}$

Tableau 10a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

Le taux de capture dans la matrice est essentiellement dû à des neutrons d'énergie inférieure à 1 eV (93,3 %).

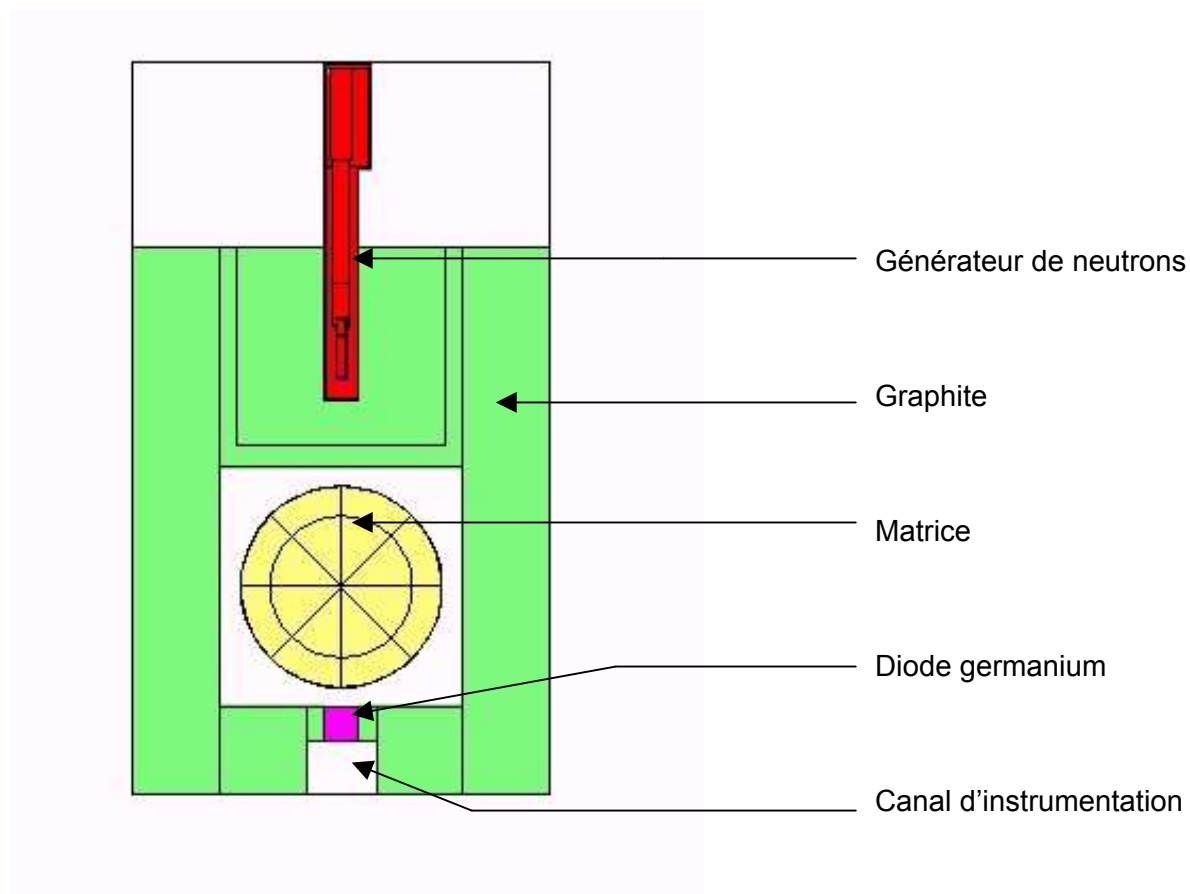


Figure 5 : Cellule avec un générateur de neutrons horizontal modélisé de façon plus réaliste (coupe horizontale).

[0 – 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
3,3	21,7	21,5	53,5	1,85.10⁻⁵	1,39.10⁻⁵

Tableau 10b : Répartition (%) de la fluence de neutrons dans la diode en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

La fluence de neutrons rapides représente 75 % de la fluence totale des neutrons pénétrant dans la diode germanium placée au plus près du fût au milieu de la paroi avant.

Energie (keV)	Rendement (/ gamma source)	Ecart-type (%)
2223	$3,55.10^{-4}$	1,74
6110	$1,69.10^{-4}$	2,52

Tableau 10c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

Le flux rapide dans la diode est d'un niveau tel qu'il conduit à devoir limiter l'émission du générateur de neutrons à $2,00.10^7$ n/s pour satisfaire le critère des 1000 h d'irradiation.

On s'attend pour cette émission au niveau de signal suivant dans les différentes raies d'intérêt :

$$S(2223 \text{ keV}) = 25 \text{ coups / seconde}$$
$$S(6110 \text{ keV}) = 80 \text{ coups / seconde}$$

Compte tenu des incertitudes de calcul, on ne peut mettre en évidence aucune différence sur le niveau de signal attendu par rapport au cas où le générateur est placé verticalement.

5 Utilisation d'une couronne de plomb

L'utilisation d'un matériau adéquat autour du générateur de neutrons peut permettre d'améliorer le flux thermique interrogateur. Le nombre de neutrons produits peut en effet être augmenté par multiplication (n,2n) sur un matériau présentant par ailleurs une section efficace de capture radiative faible.

Dans cette optique, l'adjonction d'une couronne de plomb autour du générateur de neutrons avait été étudiée pour la cellule PROMETHEE 6. De même, une étude similaire avait été réalisée pour l'amélioration du dispositif MEC.

L'idée est d'intercaler sur le parcours des neutrons rapides de 14 MeV produits par le générateur de neutrons un matériau capable de multiplier les neutrons par réaction (n,2n). Le plomb réunit ces critères, puisqu'il possède une section efficace de capture thermique de 174 mb et une section efficace de réaction (n,2n) de 1,74 barns à 10 MeV.

Une étude par calcul a donc été réalisée pour déterminer l'intérêt d'ajouter une couronne de plomb autour du générateur dans la nouvelle cellule.

La couronne de plomb a été placée autour du générateur de neutrons positionné à l'horizontale, centrée sur la source de neutrons (cible tritiée du générateur de neutrons), comme indiqué sur la figure 6.

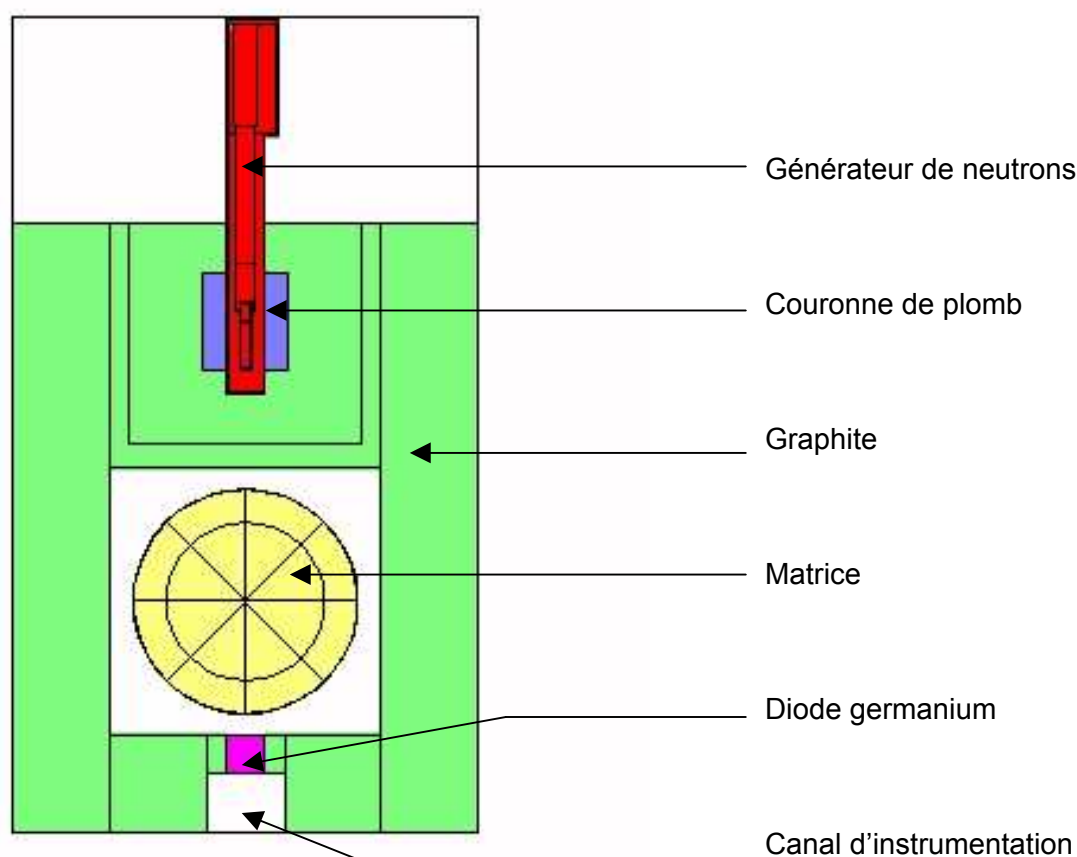


Figure 6 : Adjonction d'une couronne de plomb autour du générateur de neutrons (coupe horizontale).

L'étude a porté sur des couronnes de plomb d'épaisseur 5 cm et 10 cm, pour des longueurs allant de 10 cm à 40 cm par pas de 10 cm (tableau 11).

Epaisseur de la couronne (cm)	Longueur de la couronne (cm)				
	0 (sans plomb)	10	20	30	40
5	$1,00 \cdot 10^{-6}$	$1,43 \cdot 10^{-6}$	$1,61 \cdot 10^{-6}$	$1,67 \cdot 10^{-6}$	$1,74 \cdot 10^{-6}$
10		$1,59 \cdot 10^{-6}$	$1,98 \cdot 10^{-6}$	$2,11 \cdot 10^{-6}$	$2,16 \cdot 10^{-6}$

Tableau 11 : Variation du taux de capture ($\text{cm}^{-3}/\text{neutron émis}$) par adjonction d'une couronne de plomb autour du générateur de neutrons.

L'adjonction d'une couronne de plomb autour du générateur de neutrons permet d'augmenter substantiellement le taux de capture dans la matrice. Les résultats des calculs montrent qu'il est possible de doubler le taux de capture dans la matrice avec une couronne de plomb de 10 cm d'épaisseur et de 40 cm de long centrée sur la source de neutrons.

Une couronne de plomb de 20 cm de long et de 5 cm d'épaisseur est préconisée. Cette valeur permet d'obtenir un gain de 60 % sur le taux de capture (tableau 12a) tout en conservant une fluence de neutrons rapides ($E_n > 1 \text{ keV}$) acceptable dans la diode de $1,08 \cdot 10^{-5}$ neutrons/cm²/neutron émis (tableau 12b).

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Nombre de captures (cm ⁻³ / neutron source)
26,7	67,2	6,1	0,0	1,61.10⁻⁶

Tableau 12a : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

[0 - 0,025 eV]	[0,025 - 1 eV]	[1 eV - 1 keV]	[1 keV - 14 MeV]	Fluence totale (n/cm ²)	Fluence rapide (n/cm ²)
4,2	24,1	23,2	48,6	1,50.10⁻⁵	1,08.10⁻⁵

Tableau 12b : Répartition (%) du nombre de captures en fonction de l'énergie des neutrons interrogateurs.

La fluence rapide dans la diode est d'un niveau tel qu'elle conduit à devoir limiter l'émission du générateur de neutrons à $2,58.10^7$ n/s pour satisfaire le critère des 1000 h d'irradiation.

Energie (keV)	Rendement	Ecart-type (%)
2223	$3,38.10^{-4}$	1,80
6110	$1,61.10^{-4}$	2,52

Tableau 12c : Rendement de détection de la diode germanium pour 2 raies d'intérêt.

On s'attend pour cette émission au niveau de signal suivant dans les différentes raies d'intérêt :

$$S(2223 \text{ keV}) = 50 \text{ coups / seconde}$$

$$S(6110 \text{ keV}) = 158 \text{ coups / seconde}$$

L'utilisation d'une couronne de plomb permet un gain d'un facteur 2 sur le signal attendu dans le cas où on se limite à 1000 heures d'irradiation par rapport au cas sans couronne de plomb.

Annexe 2

Calcul des Limites de Détection

La Limite de Détection (LD) d'une méthode de mesure est la valeur minimale que doit avoir la grandeur mesurée pour que le résultat soit significativement différent de celui obtenu lors de la mesure de bruit de fond. Cela permet d'affirmer à un niveau de confiance donné que la valeur mesurée n'est pas nulle. La notion de niveau de confiance est liée à la possibilité statistique de se tromper. Un signal chlore peut être déclaré nul en présence de chlore (risque de non-détection) ou être annoncé supérieur à la LD en l'absence de chlore (risque de fausse alarme). La LD dépend du niveau de confiance voulu. Elle est fixée à 97,5 %, en suivant les recommandations de la CETAMA [44]. Dans ce cas, le risque de fausse alarme et le risque de non-détection sont égaux et valent 2,5 %.

Dans le but de décider de la présence de PVC dans la matrice à partir d'une valeur de signal mesuré, il faut être capable d'estimer le Seuil de Décision au-delà duquel ce signal (mesuré dans une région d'intérêt du spectre gamma relative à une raie du chlore) est significatif. La valeur de bruit de fond considérée dans ce cas est la mesure réalisée sur une matrice constituée uniquement de cellulose. Il s'agit bien en effet de parvenir à détecter une proportion de PVC, aussi faible soit-elle, dans une matrice de type cellulose.

Dans le cas où le signal est inférieur à la LD, la matrice est réputée être constituée uniquement de cellulose. Le coefficient d'étalonnage I.N.A. est alors celui qui correspond à la densité apparente de la matrice cellulose concernée. *A contrario*, si le signal issu du chlore est supérieur à la LD, la matrice est définie comme un mélange de cellulose et de PVC.

Dans le cas d'une raie gamma du chlore isolée, sans interférence avec une ou d'autres raies, le Seuil de Décision SD est donné par la formule générale suivante [45] :

$$SD = 2 \cdot \sigma_{A=0}$$

Où $\sigma_{A=0}$ est l'estimation de l'écart-type σ_A de l'aire nette A de la raie du chlore considérée lors de la mesure avec une matrice contenant seulement de la cellulose (dans ce cas, $A = 0$).

Dans une région d'intérêt donnée (cf. figure A2-1), l'aire nette A est la différence entre la nombre total de coups N (aire brute) et le fond F :

$$A = N - F$$

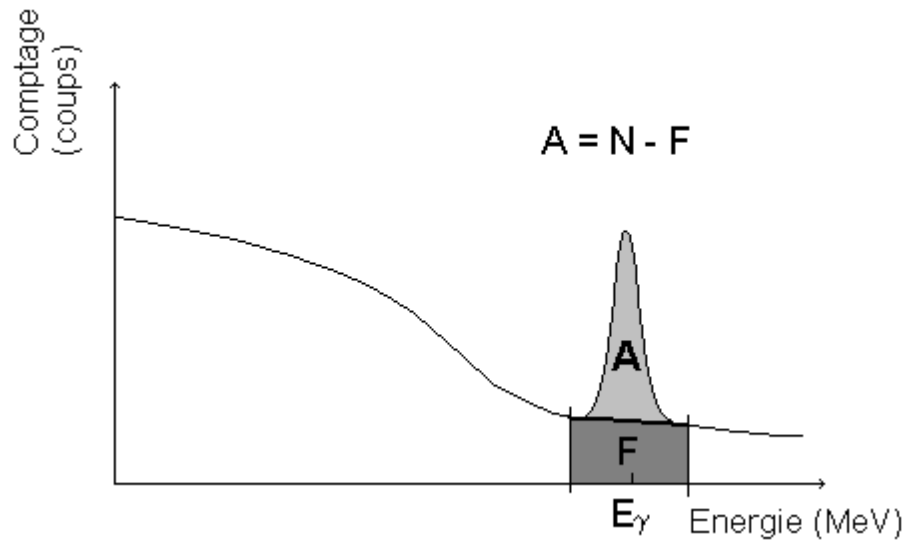


Figure A2-1 : Définition de l'aire nette A et du fond F.

La loi de combinaison des variances conduit à :

$$\sigma_A^2 = \sigma_N^2 + \sigma_F^2$$

Le comptage total N suit une loi de Poisson, d'où $\sigma_N^2 = N$. Dans le cas où $A = 0$, $N = F$, d'où :

$$\sigma_{A=0} = \sqrt{N + \sigma_F^2}$$

Avec :

N : nombre de coups sous la raie du chlore considérée (aire brute),

σ_F = écart-type associé au fond F,

Lors de la mesure de bruit de fond, en l'absence de chlore, $N = F$. D'où :

$$\sigma_{A=0} = \sqrt{F + \sigma_F^2} = \sqrt{2F}$$

La limite de détection est alors définie de la façon suivante : lorsque l'aire nette A est inférieure à SD, l'aire nette est inférieure à LD à un niveau de confiance fixé à 97,5% (cf. figure A2-2).

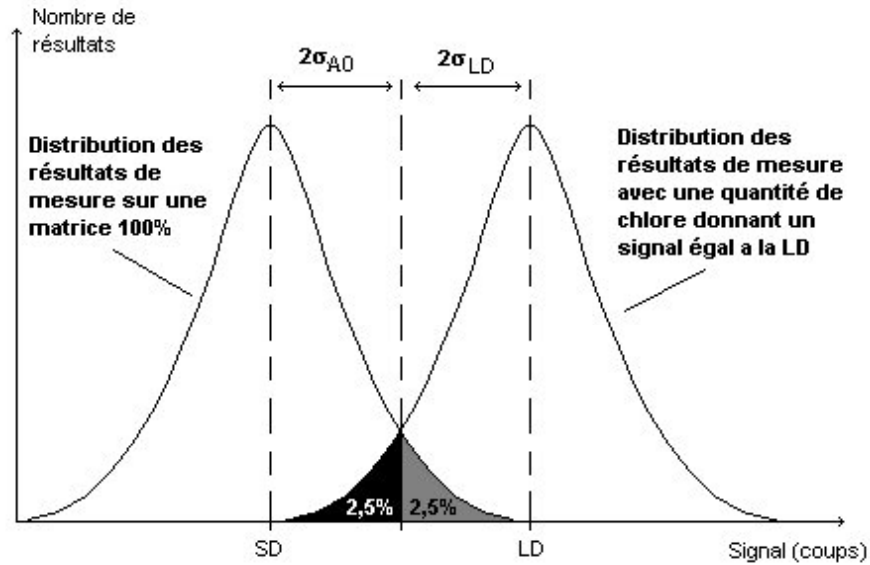


Figure A2-2 : Définition du Seuil de Décision (SD) et de la Limite de Détection (LD).

La limite de détection devient alors la somme des écarts-types des distributions du signal de bruit de fond et du signal mesuré à la LD. Cette somme est doublée lorsque le niveau de confiance vaut 97,5 %.

$$LD = 2.(\sigma_{A=0} + \sigma_{A=LD})$$

Avec :

$\sigma_{A=LD}$: valeur de σ_A lorsque le signal utile est à la LD. Dans ce cas, la surface brute N vaut $(LD + F)$:

$$\sigma_{AL} = \sqrt{LD + F + \sigma_F^2}$$

$$\sigma_{AL} = \sqrt{LD + \sigma_{A=0}^2}$$

D'où, en égalant les deux termes :

$$LD = 2.(\sigma_{A=0} + \sqrt{LD + \sigma_{A=0}^2})$$

Ce qui donne :

$$\boxed{LD = 4.(1 + \sigma_{A=0})}$$

RESUME

L'objectif de cette thèse est le développement d'une méthode de correction des effets de matrice. La spectrométrie des rayonnements gamma de capture est utilisée pour identifier et quantifier certains composants de la matrice (hydrogène et chlore) et en déduire un indicateur de sa teneur relative en chlore, afin de choisir le coefficient d'étalonnage le plus représentatif pour l'interprétation de la mesure d'Interrogation Neutronique Active (I.N.A.). Les colis de déchets concernées sont des déchets technologiques homogènes de densité inférieure à $0,4 \text{ g/cm}^3$. Des essais réalisés auprès d'une cellule de mesure I.N.A. existante ont révélé son inadéquation au problème posé. Aucun signal hydrogène provenant des matrices n'a pu être mis en évidence à cause d'un même signal parasite intense. Une cellule de mesure dédiée à la détection des rayonnements de capture, baptisée REGAIN (REcherche des Gamma d'Activation et Irradiation Neutronique), a alors été dimensionnée à l'aide du code de calcul Monte-Carlo N-Particle (MCNP). Les mesures effectuées auprès de cette nouvelle cellule ont permis de mettre en évidence l'hydrogène des matrices et d'obtenir des signaux gamma d'intérêt. L'exploitation de ces résultats a permis de définir une méthode de correction reposant sur le tracé d'abaques reliant l'indicateur retenu - rapport du signal chlore (doublet à 786 et 788 keV) et du signal hydrogène (raie à 2223,3 keV) - à la teneur relative en PolyChlorure de Vinyle (PVC) de la matrice, puis au coefficient d'étalonnage I.N.A. calculé par le code de calcul MCNP. Cette méthode de correction réduit l'incertitude sur la masse de contaminant annoncée par rapport à l'interprétation pénalisante réalisée sans connaissance de la composition de la matrice, sur la majeure partie du domaine étudié. Les limites actuelles de la méthode proposée se situent principalement dans la dispersion de l'indicateur choisi en fonction de la densité pour une composition de matrice donnée.

ABSTRACT

The aim of this thesis is to develop a correction method able to take into account the matrix effects. The main idea is to use the gamma-ray spectrometry of gamma emitted by neutron captures to identify and quantify some components of the matrix (hydrogene and chlorine). An indicator from its chlorine content is then deduced in order to choose the calibration coefficient which best represents the real composition of the matrix. The matrices of interest are those made of light homogenous technological waste (density $< 0,4 \text{ g/cm}^3$) containing hydrogenated and chlorinated materials. Measurements have been realized with an existing Neutron Interrogation device. Such measurements have proven its inadequacy : no signal from the matrix hydrogen was detected, due to an intense signal from the polyethylene contained in some cell elements. A new and specific device, named REGAIN and dedicated to active gamma-rays spectrometry, was defined with the Monte-Carlo N-Particle (MCNP) code. The experiments conducted with this new device made it possible to detect the hydrogen from the matrices and to reach significative gamma-ray signals that can be used to develop the suggested correction method. The latter is based on graphs showing the variation of the indicator – the ratio of the chlorine signal (786 and 788 keV) to the hydrogen signal (2223 keV) - with the matrix PolyVinyle Chlorure (PVC) content, and then with the calibration factor calculated by the MCNP code. This correction method leads to the reduction of the uncertainties of the announced mass of fissile material compared with those deduced from the penalizing interpretation resulting from the lack of knowledge of the matrix composition. This improvement is obtained on the major part of the studied range of matrix compositions and densities. Its current limits are mainly to be found in the dispersion of the chosen indicator according to the density for a given matrix composition.